



# Microscopie photothermique et endommagement laser

Annelise During

## ► To cite this version:

Annelise During. Microscopie photothermique et endommagement laser. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université de droit, d'économie et des sciences - Aix-Marseille III, 2002. Français. NNT : . tel-00082735

**HAL Id: tel-00082735**

**<https://theses.hal.science/tel-00082735>**

Submitted on 28 Jun 2006

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITE DE DROIT, D'ECONOMIE ET DES SCIENCES  
D'AIX-MARSEILLE  
(AIX-MARSEILLE III)

THESE

présentée et soutenue publiquement  
par **Annelise DURING** le **5 décembre 2002**

pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCES  
DE L'UNIVERSITE DE DROIT, D'ECONOMIE ET DES SCIENCES  
D'AIX-MARSEILLE

MICROSCOPIE PHOTOTHERMIQUE ET  
ENDOMMAGEMENT LASER

Spécialité : Electronique, Optronique et Systèmes  
Ecole Doctorale : Physique, Sciences de la Matière

**Rapporteurs :**

M. C. BOCCARA  
M. D. RISTAU

**Examineurs :**

M. H. BERCEGOL  
M. C. BOCCARA  
M<sup>me</sup> M. COMMANDRÉ (Directrice de thèse)  
M. G. DAHAN  
M<sup>me</sup> C. FOSSATI  
M. M. PAPUCHON  
M. D. RISTAU



## Remerciements

Ce travail a été réalisé dans l'équipe Milieux Aléatoires et Photonique de Puissance (MAP2) de l'Institut Fresnel, UMR CNRS 6133, rattaché à l'Ecole Nationale Supérieure de Physique de Marseille (ENSPM).

Je tiens tout d'abord à remercier Monsieur Claude AMRA, directeur de recherches au CNRS, pour m'avoir accueillie dans son laboratoire.

Je remercie très vivement tous les membres du jury pour l'honneur qu'ils me font en acceptant de juger ce travail.

J'exprime toute ma gratitude à Messieurs Claude BOCCARA, directeur de recherches à l'Ecole Supérieure de Physique et de Chimie Industrielles et Detlev RISTAU, professeur au Laser Zentrum à Hannovre, pour avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse.

Mes remerciements s'adressent également à Monsieur Hervé BERCEGOL, responsable du Laboratoire Endommagement Laser au Centre d'Etudes Scientifiques et Techniques d'Aquitaine du Commissariat à l'Energie Atomique (CEA/CESTA), pour l'intérêt qu'il a porté à mon travail. Je lui suis très reconnaissante de m'accueillir pour un stage de post-doctorat dans son laboratoire.

Je tiens à remercier Messieurs Michel PAPUCHON, directeur technique chez Thalès Optronique et Gilbert DAHAN, président directeur général de SESO, pour avoir accepté d'être membre de ce jury de thèse.

Madame Caroline FOSSATI, maître de conférences à l'ENSPM, a été un soutien constant durant toute la durée de ce travail de thèse. Son aide et sa bonne humeur ont été déterminantes et je l'en remercie sincèrement.

J'exprime également toute ma reconnaissance à Madame Mireille COMMAN-DRE, professeur à l'ENSPM et responsable de l'équipe MAP2, pour avoir dirigé ma thèse avec enthousiasme et motivation. Son expérience, ses conseils et son investissement personnel ont été précieux.

Je remercie Monsieur Stéphane TISSERAND, de la société IBS, pour nous avoir fait bénéficier de son expérience dans l'implantation ionique et nous avoir fourni les échantillons d'étalonnage et les mires absorbantes.

Le Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire (LASIM) et le Laboratoire d'Electronique de Technologie de l'Information (LETI) du CEA nous ont également fourni des échantillons, fabriqués à partir de nano-inclusions métalliques sans lesquels une partie de ce travail de thèse n'aurait pu être menée et je les en remercie.

Je remercie tout particulièrement Monsieur Jean-Luc RULLIER, du CEA Ile de France, pour l'animation scientifique dynamique de l'étude sur les nano-inclusions d'or.

Je tiens également à remercier l'ensemble du personnel du laboratoire ainsi que tous les doctorants pour leur aide, leur sympathie et leur amitié. Je remercie en particulier Emmanuel DROUARD pour sa ponctualité quotidienne ainsi qu'Olivier GILBERT, pour ses corrections orthographiques (parfois sujettes à discussion) et pour l'animation qu'il met régulièrement dans le bureau.



# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>1 Les méthodes photothermiques : caractérisation de composants optiques et application à l'imagerie haute résolution</b>	<b>5</b>
1.1 Résumé . . . . .	5
1.2 Introduction . . . . .	6
1.3 Méthodes photothermiques pour la caractérisation de composants optiques . . . . .	6
1.3.1 Méthodes photothermiques . . . . .	7
1.3.2 Microscopie photothermique . . . . .	13
1.4 Faisabilité d'un dispositif d'imagerie haute résolution par déflexion photothermique . . . . .	15
1.4.1 Définition de la résolution pour une cartographie et conditions d'optimisation . . . . .	15
1.4.2 Application à la détection de nano-défauts . . . . .	17
1.5 Choix d'une configuration de déflexion photothermique . . . . .	20
1.5.1 Calcul de la déflexion photothermique . . . . .	20
1.5.2 Comparaison des deux configurations . . . . .	28
1.5.3 Effets de la focalisation du faisceau pompe . . . . .	34
1.6 Conclusion . . . . .	39
<b>2 Etude multi longueurs d'onde de défauts absorbants et diffusants</b>	<b>41</b>
2.1 Résumé . . . . .	41
2.2 Introduction . . . . .	42
2.3 Dispositif expérimental . . . . .	43
2.3.1 Le montage . . . . .	43
2.3.2 Le dispositif de positionnement de l'échantillon . . . . .	45
2.3.3 Les lasers . . . . .	45
2.3.4 L'étalonnage . . . . .	47
2.3.5 Mesure de la diffusion partielle . . . . .	48
2.4 Définition d'un outil de comparaison . . . . .	49
2.4.1 Coefficient de corrélation . . . . .	49
2.4.2 "Pic de Corrélation en Energie" . . . . .	51

2.4.3	Validation du PCE et caractérisation du dispositif expérimental . . . . .	51
2.5	Résultats expérimentaux . . . . .	57
2.5.1	Substrat nu . . . . .	58
2.5.2	Couches minces . . . . .	59
2.5.3	Cas particulier de corrélations entre cartographies d'absorption pour différentes longueurs d'onde . . . . .	63
2.5.4	Etude à trois longueurs d'onde . . . . .	65
2.6	Conclusion . . . . .	67
<b>3</b>	<b>Réalisation d'un dispositif couplé de microscopie photothermique et d'endommagement laser</b>	<b>69</b>
3.1	Résumé . . . . .	69
3.2	Introduction . . . . .	70
3.3	Microscope photothermique . . . . .	71
3.3.1	Les lasers . . . . .	73
3.3.2	Le signal mesuré . . . . .	74
3.3.3	L'étalonnage . . . . .	77
3.3.4	La résolution . . . . .	80
3.3.5	Exemple d'application à l'imagerie haute résolution . . . . .	85
3.4	Dispositif de test d'endommagement laser . . . . .	95
3.4.1	Le laser source . . . . .	97
3.4.2	Système d'imagerie . . . . .	99
3.4.3	Détection d'endommagement . . . . .	100
3.4.4	Détermination de la densité d'énergie . . . . .	100
3.5	Procédure expérimentale . . . . .	101
3.5.1	Différentes procédures . . . . .	101
3.5.2	Optimisation des mesures photothermiques . . . . .	103
3.6	Conclusion . . . . .	107
<b>4</b>	<b>Résultats des expériences de microscopie photothermique avant et après tir sur des nano-défauts</b>	<b>109</b>
4.1	Résumé . . . . .	109
4.2	Introduction . . . . .	110
4.3	Les échantillons étudiés . . . . .	111
4.3.1	Procédé de fabrication . . . . .	111
4.3.2	Caractérisation de la surface des échantillons . . . . .	112
4.3.3	Mesure de la densité d'énergie du seuil bas . . . . .	117
4.4	Caractérisation des échantillons par microscopie photothermique . . . . .	118
4.4.1	Cartographies photothermiques de nano-défauts . . . . .	119
4.4.2	Répétabilité des mesures . . . . .	121
4.5	Résultats des expériences de microscopie photothermique avant/après tir . . . . .	122

4.5.1	Procédure 1/1 . . . . .	123
4.5.2	Procédure R/1 . . . . .	126
4.5.3	Tir à coté d'une bille . . . . .	128
4.5.4	Conclusions préliminaires . . . . .	130
4.5.5	Etudes morphologiques après tirs . . . . .	131
4.6	Conclusion . . . . .	134
<b>Conclusion</b>		<b>135</b>
<b>Bibliographie</b>		<b>139</b>



## *TABLE DES MATIÈRES*

---

# Introduction

Des composants optiques de hautes performances sont utilisés dans de nombreuses applications industrielles ainsi que dans de grands projets de recherche. Les projets de fusion thermonucléaire contrôlée (Laser MegaJoule en France et National Ignition Facility aux Etats-Unis, notamment) requièrent des composants à faibles pertes par absorption optique, supportant des densités d'énergie d'irradiation très élevées.

Ainsi, le développement des techniques de mesure de l'absorption dans les composants optiques est souvent associé à la recherche sur l'endommagement laser. L'absorption est généralement supposée être une des origines des modifications irréversibles des propriétés des composants optiques, d'absorption généralement peu élevée, soumis à de fortes irradiations. Plus que le niveau moyen de l'absorption, ses variations locales, associées à la présence de défauts dans le volume et à la surface du matériau (ou aux interfaces dans le cas de matériaux en couches minces), peuvent induire des échauffements conduisant à l'initiation d'un endommagement par fusion ou fracture thermoélastique. L'existence de défauts de taille nanométrique précurseurs de l'endommagement a été mise en évidence de façon destructive [1–7]. Une des techniques destructives utilisée au laboratoire est la mesure des courbes de probabilité d'endommagement en fonction de la fluence incidente [8]. Les défauts étant généralement, du fait de leur taille nanométrique, faiblement absorbants, leur détection non destructive nécessite l'emploi d'un dispositif de mesure de haute détectivité et de haute résolution spatiale.

La technique de déflexion photothermique est basée sur la mesure de la déflexion d'un faisceau sonde induite par l'absorption optique d'un faisceau pompe modulé. Ses différentes configurations ont été largement utilisées au cours des 20 dernières années pour caractériser avec une haute sensibilité les propriétés thermiques et les pertes par absorption (jusqu'à  $10^{-7}$ ) des couches minces optiques et des verres [9–15]. Elle permet également de cartographier les défauts absorbants et les inhomogénéités thermiques des matériaux [16–23]. Dans certaines configurations, il est possible d'augmenter la résolution spatiale latérale de ces mesures en focalisant le faisceau pompe. Dans ces conditions, la technique de déflexion photothermique peut être considérée comme une technique de microscopie. Elle a en effet permis de détecter et localiser des défauts absorbants de quelques dizaines

de microns à quelques microns de diamètre [24–31].

Des défauts de taille sub-micronique tels que fissures, résidus de polissage, contaminants, inhomogénéités de volume, sont classiquement détectés grâce à des techniques d'imagerie haute résolution. On peut citer, par exemple, la microscopie à force atomique [32, 33], la microscopie à réflexion interne totale [34–37], les mesures de diffusion [38–40], la microscopie électronique à balayage [41, 42] et la microscopie optique à balayage en champ proche [43–45]. Ces techniques sont sensibles principalement aux inhomogénéités de structure et aux variations d'indice de réfraction. Elles permettent de détecter plusieurs types de défauts mais ne donnent aucune information directe sur l'absorption et les phénomènes thermo-physiques impliqués dans l'endommagement laser.

Dans le but de détecter les nano-défauts absorbants dans les matériaux optiques et de mieux comprendre leur rôle dans l'initiation de l'endommagement laser, nous nous proposons de mettre en oeuvre un dispositif de microscopie photothermique haute résolution. Ce dispositif devra permettre de détecter de manière non destructive des défauts absorbants de taille sub-micronique. Il permettra également, en étant combiné à un dispositif de test d'endommagement, de contrôler in situ l'évolution de l'absorption des défauts avec l'irradiation laser. Nous appliquerons ce microscope à l'étude du comportement sous irradiation de nano-inclusions d'or enterrées entre deux couches de silice.

Le chapitre 1 est consacré à la présentation des méthodes photothermiques et à leur application à la caractérisation de composants optiques ainsi qu'à l'imagerie haute résolution. Nous présentons tout d'abord une étude bibliographique décrivant les principales méthodes photothermiques employées dans notre domaine d'application. Nous étudions ensuite la faisabilité d'un dispositif d'imagerie haute résolution pour la détection de nano-défauts absorbants. Nous définissons les conditions permettant d'obtenir une résolution sub-micronique et la taille limite des défauts qu'il est alors possible de détecter en fonction de leur absorption. Finalement, Le choix d'une configuration expérimentale pour la réalisation d'un dispositif d'imagerie haute résolution se fait grâce à une étude comparative théorique. Un soin particulier est apporté à l'étude de la déflexion lorsque le faisceau pompe est focalisé.

Nous nous intéressons dans le chapitre 2 à l'étude de l'absorption et de la diffusion des défauts à plusieurs longueurs d'onde dans les gammes de l'Ultra-Violet, du visible et de l'Infra-Rouge. Nous présentons tout d'abord le dispositif expérimental utilisé pour cartographier simultanément l'absorption et la diffusion. Les principaux avantages de ce dispositif sont une haute sensibilité et un repositionnement précis qui permet de comparer pixel à pixel les cartographies à diffé-

rentes longueurs d'onde. Nous définissons ensuite l'outil de comparaison utilisé pour cette étude. Enfin, les résultats obtenus sur divers substrats nus et couches minces sont présentés et discutés : nous montrons que les défauts absorbants sont fortement dépendants de la longueur d'onde, contrairement aux défauts diffusants. Ainsi, la caractérisation de l'absorption des composants optiques doit être faite à leur longueur d'onde d'utilisation. En particulier, les mesures d'absorption et les tests d'endommagements doivent être faits à la même longueur d'onde.

La mise en oeuvre d'un dispositif couplé de microscopie photothermique et d'endommagement laser à la même longueur d'onde est présentée au chapitre 3. La première partie du chapitre est consacrée à la réalisation expérimentale du microscope photothermique et sa caractérisation. En particulier une résolution meilleure que  $1\text{ }\mu\text{m}$  est démontrée sur des échantillons spécialement fabriqués présentant des défauts non isolés de  $1\text{ }\mu\text{m}$  de diamètre. Un exemple d'application à l'imagerie haute résolution est également présenté. La deuxième partie du chapitre concerne la mise en place du dispositif d'endommagement laser sur le banc du microscope photothermique.

Ce nouveau dispositif est alors appliqué à l'étude non destructive de nano-défauts absorbants. Les résultats obtenus sur des échantillons "modèles", constitués d'inclusions d'or enrobées de silice, sont présentés dans le chapitre 4. Cette étude s'inscrit dans le cadre plus général d'une collaboration avec le CEA/CESTA et le CEA Ile de France. Nous présentons tout d'abord la caractérisation des échantillons fabriqués, et nous attachons spécialement à la détermination des tailles et distributions des inclusions d'or. Nous montrons ensuite que le microscope photothermique permet de détecter de manière non destructive ces défauts absorbants, qu'ils soient présents sous forme d'agrégats ou de nano-inclusions. Nous présentons alors les résultats de l'étude in situ de l'évolution de l'absorption des inclusions d'or lors de l'irradiation. Cette étude permet de mettre en évidence d'une part que les défauts localisés constitués par les inclusions d'or sont bien des précurseurs de l'endommagement laser, d'autre part que l'absorption de l'or diminue progressivement suite à des tirs à basse fluence, sans modification de la surface. Ce phénomène peut être considéré comme un processus de "pré-endommagement".



# Chapitre 1

## Les méthodes photothermiques : caractérisation de composants optiques et application à l'imagerie haute résolution

### 1.1 Résumé

La détection non destructive des nano-défauts absorbants précurseurs de l'endommagement laser fait appel à des techniques de caractérisation alliant haute détectivité et haute résolution. Les méthodes photothermiques constituent un moyen non destructif performant de détermination de l'absorption et des propriétés thermiques des composants optiques.

Une étude bibliographique décrit les principales méthodes photothermiques employées pour mesurer de faibles absorptions dans les composants optiques. Nous montrons l'intérêt d'une forte focalisation du faisceau pompe pour l'obtention d'une résolution sub-micronique et la détection de nano-défauts absorbants. Le calcul théorique de la déflexion photothermique conduit alors au choix d'une configuration expérimentale pour la réalisation d'un dispositif de microscopie photothermique haute résolution.

## 1.2 Introduction

Le sujet de notre étude concerne la compréhension des phénomènes initiateurs de l'endommagement laser dans les composants optiques. C'est pourquoi, nous nous proposons de mettre en oeuvre un dispositif expérimental permettant la détection non destructive des nano-défauts absorbants précurseurs de l'endommagement laser. Le dispositif que nous envisageons de réaliser doit permettre de mesurer l'absorption avec une haute sensibilité et d'imager les défauts avec une haute résolution.

Les méthodes photothermiques constituent un moyen performant de caractérisation non destructive de l'absorption et des propriétés thermiques des composants optiques. Les méthodes de déflexion photothermique, basées sur la mesure de la déflexion d'un faisceau sonde, induite par l'absorption de l'énergie d'un faisceau pompe modulé, sont parmi les plus sensibles. De plus, il est possible d'augmenter simplement la résolution spatiale latérale de tels dispositifs notamment en focalisant le faisceau pompe.

Le choix de la configuration ainsi qu'un certain nombre de conditions expérimentales sont imposés par la nécessité de l'obtention d'une résolution sub-micronique pour la détection de défauts de taille nanométrique.

Nous présentons au paragraphe 1.3 une étude bibliographique décrivant les principales méthodes photothermiques existantes. Cette étude ne se veut pas exhaustive et présente uniquement les méthodes employées dans notre domaine d'application.

Nous étudions au paragraphe 1.4 la faisabilité d'un dispositif photothermique d'imagerie haute résolution pour la détection de nano-défauts absorbants. Nous définissons les conditions permettant d'obtenir une résolution sub-micronique et la taille limite des défauts qu'il est alors possible de détecter en fonction de leur absorption.

Finalement, le choix d'une configuration expérimentale pour la réalisation d'un dispositif d'imagerie haute résolution se fait au paragraphe 1.5, grâce à une étude comparative théorique. Un soin particulier est apporté à l'étude de la déflexion lorsque le faisceau pompe est fortement focalisé.

## 1.3 Méthodes photothermiques pour la caractérisation de composants optiques

Les progrès réalisés dans la fabrication de matériaux optiques pour le visible, l'infrarouge ou l'ultraviolet ont conduit à la réalisation de composants optiques à faibles pertes par absorption. Le facteur d'absorption de ces composants, défini comme le rapport de la puissance absorbée sur la puissance incidente, est de l'ordre de  $10^{-4}$  à  $10^{-7}$  et peut même atteindre  $10^{-8}$  dans le cas d'absorption

### 1.3. MÉTHODES PHOTOTHERMIQUES POUR LA CARACTÉRISATION DE COMPOSANTS OPTIQUES

---

volumique [46]. Ainsi, de nouvelles techniques de mesure de faibles absorptions ont dû être développées. Certaines méthodes déjà existantes ont été améliorées ou modifiées tandis que de nouvelles méthodes ont été mises au point. Parmi elles, on peut distinguer les méthodes non photothermiques des méthodes photothermiques.

De manière générale, les méthodes non photothermiques ne sont pas assez sensibles pour la caractérisation de matériaux optiques.

Les méthodes optiques telles que spectrophotométrie [47], ellipsométrie spectroscopique [48–50] permettent au mieux de mesurer des coefficients d’extinction de l’ordre de  $10^{-4}$ , correspondant à des pertes de l’ordre de  $10^{-3}$ . Il n’est pas possible, avec ces méthodes, de distinguer les pertes par absorption des pertes par diffusion et une mesure complémentaire de diffusion est nécessaire pour déterminer l’absorption. Finalement, ces méthodes ne permettent guère de détecter des niveaux d’absorption inférieurs à  $10^{-3}$  de manière précise et répétable.

Les méthodes basées sur l’analyse de surface par faisceau de particules (Auger Electron Spectroscopy (AES), Rutherford Backscattering Spectrometry (RBS), Secondary Ion Mass Spectroscopy (SIMS) ou Secondary Neutral Mass Spectroscopy (SNMS)), quant à elles, permettent de caractériser la microstructure des couches minces et peuvent être utilisées comme complément d’information en connexion avec des méthodes photothermiques.

#### 1.3.1 Méthodes photothermiques

Les méthodes photothermiques permettent une mesure précise et répétable de niveaux d’absorption pouvant atteindre  $10^{-7}$ . Elles permettent également la caractérisation des propriétés optiques, thermiques et thermoélastiques des matériaux.

Dans toutes les configurations possibles, les méthodes photothermiques sont basées sur le dégagement de chaleur qui se produit lors de l’interaction entre un faisceau optique et un échantillon absorbant. L’absorption de l’énergie produit, en l’absence de réaction photochimique et de fluorescence, des processus de désexcitation non-radiatifs et se traduit donc par une élévation de température dans l’échantillon. Les différentes techniques de mesure de l’absorption ont toutes en commun la nécessité de faire varier temporellement l’intensité du faisceau excitateur (également appelé faisceau pompe). Cette variation temporelle peut être pulsée ou modulée.

Les multiples techniques mises en oeuvre diffèrent suivant :

- la nature du signal détecté : variations de température, variations de propriétés optiques ou thermophysiques
- la nature de la sonde utilisée : sonde en contact (thermocouple en calorimétrie laser) ou sans contact (faisceau sonde pour les méthodes de déflexion) ;



la détection sera donc directe si elle est appliquée à l'échantillon lui-même (sonde en contact) ou indirecte si elle est appliquée au milieu environnant l'échantillon (sonde sans contact)

On peut trouver, dans la littérature, plusieurs articles comparatifs des différentes méthodes photothermiques [16, 51–54]. Ces articles s'appuient sur des études théoriques et expérimentales de la sensibilité des différentes méthodes, ainsi que sur des comparaisons de valeurs expérimentales d'absorption obtenues. Nous présentons ici quelques unes des méthodes photothermiques classiquement utilisées dans notre domaine d'application, pour la mesure de faibles absorptions et la détermination des propriétés thermiques.

### Calorimétrie laser

L'échantillon est chauffé par un laser pompe de puissance constante pendant une période suffisamment longue pour élever la température de l'échantillon par rapport aux milieux ambiants. Les mesures de calorimétrie laser s'effectuent en enregistrant cette élévation de température grâce à un thermocouple, un thermistor ou un détecteur pyroélectrique directement collé à la surface de l'échantillon à mesurer, comme représenté figure 1.1. Aucun échantillon d'étalonnage n'est nécessaire : une modélisation adaptée permet de relier l'élévation de température à la puissance optique absorbée. Le rapport puissance absorbée sur puissance incidente donne ensuite directement le facteur d'absorption [55, 56].

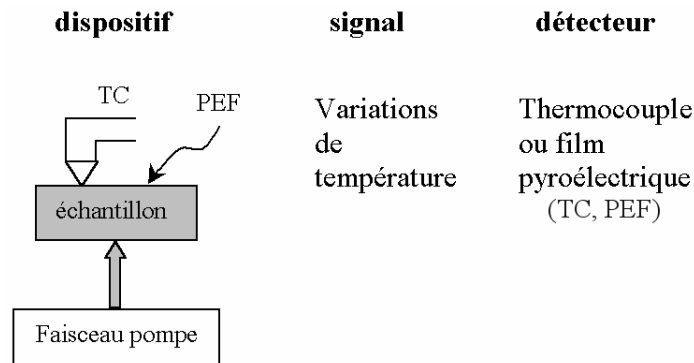


FIG. 1.1 – Schéma de principe de la calorimétrie laser

Cependant, la calorimétrie laser peut conduire à l'endommagement de l'échantillon à cause des fortes puissances (de un à quelques kilowatts) nécessaires aux mesures. De plus, l'échantillon peut être contaminé par le contact avec la sonde de température. Plusieurs alternatives ont donc été développées. Il est possible, par exemple, de mesurer par interférométrie la variation de chemin optique due à l'échauffement [57, 58], ou bien de mesurer la température en détectant l'énergie rayonnée par l'échantillon dans la gamme infrarouge (radiométrie infrarouge) [59].

### 1.3. MÉTHODES PHOTOTHERMIQUES POUR LA CARACTÉRISATION DE COMPOSANTS OPTIQUES

---

Le sensibilité limite de ce type de dispositif est de l'ordre de 1 à 10 ppm, ce qui est suffisant pour la caractérisation de la plupart des traitements optiques en couches minces [60], mais devient insuffisant dans le cas de verres nus pour lesquels l'absorption de surface peut être inférieure à 1 ppm, en particulier dans les gammes du visible et de l'infra-rouge.

#### Spectroscopie photoacoustique

L'échantillon est chauffé par un laser pompe modulé en intensité. La réponse thermique induite est convertie en oscillations de pression dans une cellule à gaz adjacente (modèle du "piston thermique") [61, 62]. Un microphone à condensateur de grande sensibilité, couplé à une détection synchrone, est alors utilisé comme sonde pour mesurer l'onde acoustique et déterminer ensuite, grâce à une modélisation [63, 64], l'absorption et les constantes optiques et thermiques des matériaux [65–67]. Le schéma de principe de cette méthode est représenté figure 1.2.

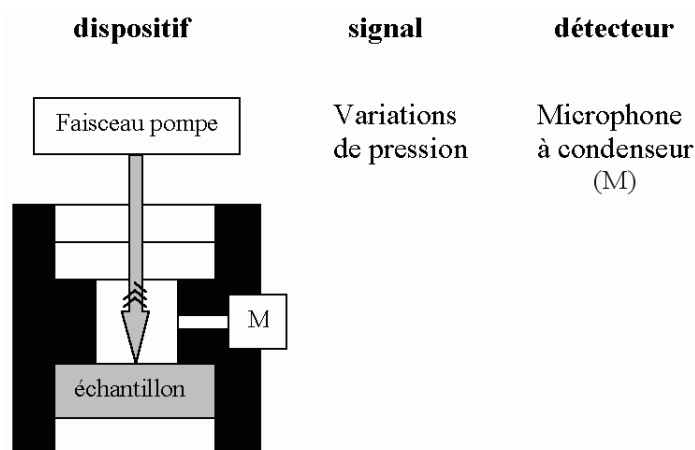


FIG. 1.2 – Schéma de principe de la spectroscopie photoacoustique

#### Thermoréflectivité modulée

L'échantillon est chauffé par un laser pompe modulé en intensité qui induit des variations modulées du facteur de réflexion. En effet, l'élévation de température de l'échantillon se traduit par des changements d'indice de réfraction du matériau et donc par une réflectivité modulée de la surface de l'échantillon [68]. Les variations de réflectivité d'un faisceau sonde dont l'intensité réfléchie suit cette même variation sont mesurées grâce à un photodétecteur comme représenté sur la figure 1.3. La puissance du faisceau sonde doit être faible par rapport à celle du pompe.

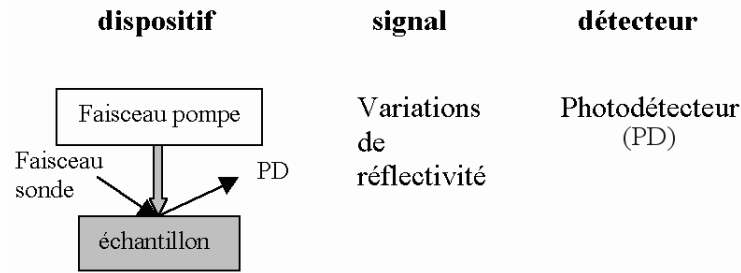


FIG. 1.3 – Schéma de principe de la thermoréflexivité modulée

Cependant, les effets de thermoréflexivité modulée sont généralement faibles pour les verres et les matériaux diélectriques, du fait de leur faible absorption. Cette méthode est donc essentiellement utilisée pour la caractérisation des métaux et des semiconducteurs [69–72].

En déposant une couche métallique superficielle sur les échantillons, cette méthode peut également être utilisée pour déterminer la conductivité thermique des couches minces diélectriques. Cependant, l'échantillon étudié n'est alors plus réutilisable et on ne peut plus considérer la thermoréflexivité modulée comme une méthode de caractérisation non destructive.

### Lentille thermique

L'échantillon est chauffé par un laser pompe pulsé ou modulé en intensité. Le gradient d'indice ainsi que les variations du profil de la surface induits par cet échauffement agissent comme une lentille thermique. Ces variations d'indice et de profil de surface se traduisent donc par la focalisation/défocalisation d'un faisceau sonde traversant la lentille thermique [73]. On mesure alors, grâce à un photodétecteur, les variations d'intensité au centre du faisceau sonde pour en déduire l'absorption de l'échantillon comme représenté figure 1.4. La puissance du faisceau sonde doit être faible par rapport à celle du pompe.

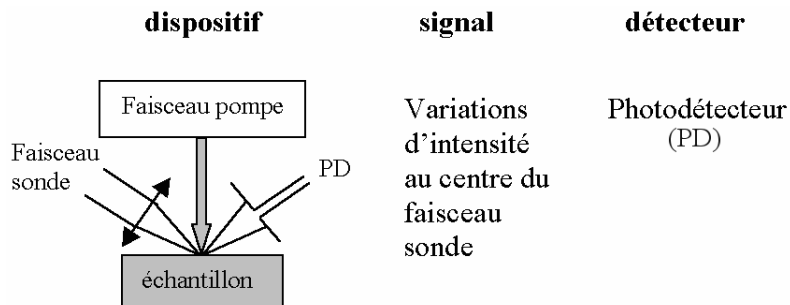


FIG. 1.4 – Schéma de principe de la méthode de lentille thermique

La sensibilité des méthodes de lentille thermique est généralement plus faible

que celle des méthodes de déflexion photothermique. Elle peut être améliorée en utilisant la méthode de lentille thermique de surface [74–76].

#### Déflexion photothermique

Les méthodes de déflexion photothermique ont été mises au point au début des années 80 [9–15]. Ces techniques sont très utilisées pour déterminer avec une haute sensibilité les pertes par absorption, jusqu'à des niveaux de l'ordre de 0,1 ppm ( $10^{-7}$ ), ainsi que les propriétés thermiques des composants optiques.

Le principe est le suivant. L'échantillon est chauffé par un laser pompe modulé en intensité. L'élévation modulée de température induite par l'absorption du matériau conduit à la formation de gradients d'indice et de variations de profil de la surface. Ceux-ci entraînent la déviation d'un faisceau sonde de faible puissance traversant la zone chauffée. On peut alors mesurer la déviation de ce faisceau grâce à un détecteur de position. Le module de cette déviation est en première approximation proportionnel à l'absorption. On déduit donc la valeur de l'absorption, à partir la mesure du module de cette déviation, grâce à une procédure d'étalonnage adaptée.

Différentes méthodes peuvent être utilisées pour déterminer les propriétés thermiques. Ceci est possible, par exemple, en mesurant la phase de la déflexion photothermique en fonction de la fréquence ou bien en fonction du décalage des centres des faisceaux pompe et sonde.

Les trois configurations différentes utilisées sont représentées figure 1.5.

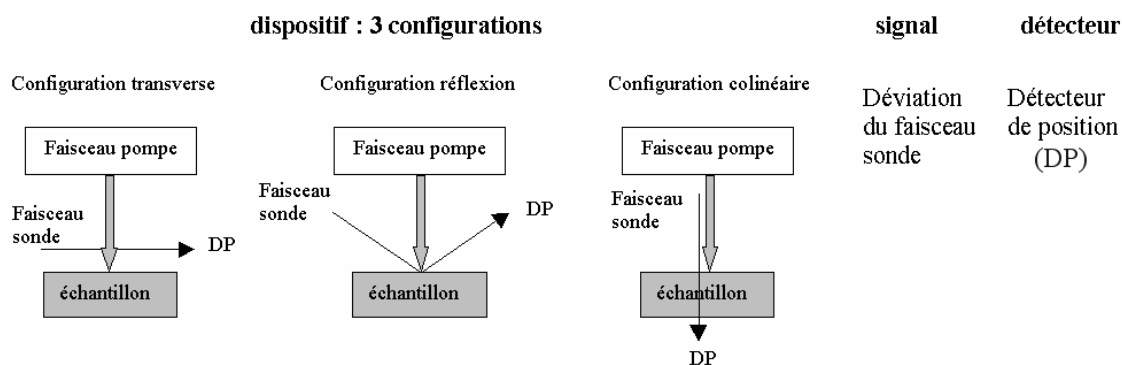


FIG. 1.5 – Schéma de principe de la déflexion photothermique dans les 3 configurations d'utilisation

Dans la configuration dite "transverse" ou encore "effet mirage", le faisceau sonde se propage dans l'air parallèlement à l'échantillon. Il est dévié uniquement par le gradient d'indice dans l'air dans la direction normale à l'échantillon. Les aspects théoriques sont traités en détail dans [10] et [11].

La mesure de la déformation de surface donne aussi de bons résultats dans l'évaluation des propriétés optiques et thermiques des couches minces diélec-

triques [12, 13, 16–18]. On mesure la déflexion du faisceau sonde réfléchi qui est proportionnelle à la pente de la déformation de surface. Nous nous référerons à cette technique en l'appelant configuration "réflexion".

Dans la troisième configuration dite "colinéaire" ou encore "transmission" on mesure la déflexion du faisceau sonde transmis. Cette configuration a été adoptée pour la première fois par Boccara et al. en 1980 [9]. Le faisceau est dévié par la déformation de surface ainsi que par les gradients d'indice dans l'air, dans la couche et dans le substrat. Cette configuration colinéaire impose que l'échantillon testé soit partiellement transparent à la longueur d'onde du faisceau sonde.

Le dispositif expérimental mis en place par notre équipe depuis 1990 permet, par un système de rotation des différents lasers et détecteurs, d'utiliser l'une ou l'autre des trois configurations suivant la nature des échantillons à caractériser et les applications concernées [19–23].

En configuration transverse, le signal photothermique est sensible essentiellement au coefficient thermique de l'indice de réfraction ( $\frac{\partial n}{\partial T}$ ) de l'air, tandis qu'en configuration colinéaire, il est sensible au coefficient thermique de l'indice de réfraction de tous les milieux traversés par le faisceau sonde : air, couche mince et substrat. Par contre, en configuration réflexion, le signal est sensible essentiellement au coefficient d'expansion thermique de la couche et du substrat.

Pour les techniques de déflexion photothermique que nous venons de décrire, le signal est nul lorsque l'absorption du composant est nulle. Expérimentalement, le signal mesuré n'est jamais absolument nul lorsque l'absorption du composant est nulle, à cause de l'existence de bruit en l'absence de signal (bruit des instruments de détection par exemple). Ce signal peut être ramené à une valeur d'absorption minimale mesurable grâce à une procédure d'étalonnage. Nous définissons la détectivité du dispositif par cette valeur d'absorption minimale mesurable. La sensibilité du dispositif, elle, est la réponse du dispositif à une absorption non nulle. Nous la définissons comme le rapport du signal induit par l'absorption d'un échantillon sur cette absorption. Ceci correspond à lui donner la valeur  $1/ET$ , où  $ET$  est le coefficient d'étalonnage (cf. 3.3.3).

En outre, il est possible de faire varier la résolution spatiale en profondeur pour les dispositifs photothermiques utilisant des faisceau pompes modulés. En effet, la profondeur de pénétration thermique étant proportionnelle à l'inverse de la fréquence de modulation, il est possible d'augmenter simplement la résolution spatiale en profondeur en augmentant la fréquence de modulation [28, 30]. Expérimentalement, ceci est réalisable dans le cas d'un faisceau pompe de diamètre élevé (plusieurs dizaines de microns), pour lequel l'hypothèse de transfert de chaleur à une dimension est valable.

Pour augmenter la résolution spatiale latérale, il est nécessaire d'utiliser un faisceau pompe de diamètre faible, donc de focaliser le faisceau pompe sur la surface de l'échantillon. On parle alors de microscopie photothermique. Les principes de cette technique sont détaillés au paragraphe suivant.

### 1.3.2 Microscopie photothermique

La microscopie photothermique associe la haute sensibilité des méthodes photothermiques à la possibilité d'une étude détaillée et spatialement résolue de la distribution des défauts absorbants ou des inhomogénéités thermophysiques. Ces techniques sont particulièrement adaptées à l'étude non destructive des optiques à haute tenue au flux. En effet, un des mécanismes de claquage généralement supposé être à l'origine de l'endommagement laser est l'absorption inhomogène liée à la présence de défauts locaux dans le volume et à la surface du matériau (ou aux interfaces dans le cas de matériaux en couches minces).

La microscopie photothermique, a été introduite en 1982 par Mundy et al. [24] dans le but de détecter ces défauts. Nous allons voir comment elle permet de faire varier la résolution spatiale latérale. Classiquement, la technique la plus utilisée pour augmenter la résolution spatiale latérale consiste à focaliser le faisceau pompe sur l'échantillon [24–27]. La mesure consiste alors à cartographier l'absorption de l'échantillon, en déplaçant soit l'échantillon soit les lasers, de manière à imager les défauts absorbants (ou les inhomogénéités thermophysiques de l'échantillon).

Cette technique a été largement étudiée pour la déflexion photothermique en configuration réflexion et appliquée à la détection de défauts absorbants dans les traitements anti-reflets UV [29] ou les couches minces de  $\text{ZrO}_2$  et  $\text{MgF}_2$  [28, 30]. Dans cette configuration, le faisceau pompe focalisé a un diamètre à  $1/e^2$  de quelques dizaines de microns. Ainsi, la taille des défauts observés est de plusieurs microns. Des défauts absorbants de taille  $3\ \mu\text{m}$  ont pu être observés par notre équipe en utilisant la configuration déflexion photothermique colinéaire avec un faisceau pompe de diamètre à  $1/e^2$  égal à  $3\ \mu\text{m}$  focalisé grâce à un objectif de microscope. Les résultats sont présentés dans le thèse de A. Gatto [31]. Notons que la taille du faisceau sonde n'a pas d'influence directe sur la résolution du dispositif. Elle n'a d'influence que sur sa sensibilité : celle-ci est d'autant plus élevée que le diamètre du faisceau sonde est petit devant le diamètre du faisceau pompe.

Avec un faisceau pompe fortement focalisé, on observe des singularités du signal photothermique vis à vis de la résolution spatiale en profondeur. Ces singularités ont été observées en configuration réflexion, dans le cas d'une couche thermiquement épaisse. Il a été montré, notamment, que la réponse du matériau provient alors essentiellement de la couche et non plus du substrat, et que la fréquence de modulation n'a plus d'influence sur la résolution spatiale en profondeur [17]. Ceci peut s'expliquer par le fait que lorsque le faisceau pompe est fortement focalisé, l'hypothèse de transfert de chaleur à une dimension n'est plus valable. L'interprétation des résultats ne peut alors se faire qu'en considérant le transfert de chaleur dans les trois dimensions de l'espace. Notons qu'avec un faisceau pompe fortement focalisé la résolution spatiale en profondeur est toujours élevée du fait de la réduction de la profondeur de champ.

D'autres techniques n'utilisant pas la focalisation du faisceau pompe sont également utilisées pour réaliser des dispositifs de microscopie photothermique.

En ce qui concerne la thermoréflexivité, une technique consistant à remplacer le photodétecteur par une matrice de photodétecteurs CCD, sans focaliser le faisceau pompe peut être utilisée [77]. Dans ce cas la taille de la zone chauffée est associée à la longueur de diffusion thermique, elle même proportionnelle à l'inverse de la fréquence de modulation. Pour augmenter la résolution, il faut donc augmenter également la fréquence. Compte tenu de la fréquence d'acquisition de la camera CCD, ceci est rendu possible par une technique de stroboscopie associée à un système de détection hétérodyne. Une fréquence de modulation de l'ordre du MegaHertz peut alors être utilisée, permettant l'obtention d'une résolution de l'ordre du micron.

La méthode de calorimétrie laser, quant à elle, peut être associée à un système de microscopie en champ proche en utilisant une sonde thermique locale [78]. Celle-ci est constituée d'une pointe conique à l'extrémité de laquelle est placé un thermocouple. La résolution du dispositif est alors liée à la taille de la sonde qui est de l'ordre de 100 nm. La surface de l'échantillon est chauffée périodiquement par un laser pompe. Deux cartographies simultanées peuvent alors être réalisées : l'une constituée de la distribution des variations de température et l'autre de la topographie de la surface de l'échantillon étudié. L'intérêt de cette technique est d'obtenir avec une haute résolution spatiale latérale (de l'ordre de 100 nm) des cartographies simultanées de température et de topographie de la surface.

Le choix d'une technique par rapport à l'autre est déterminé par l'application désirée et la nature du composant à tester, et souvent par la culture du laboratoire et des expérimentateurs. Le dispositif de microscopie basé sur la déflexion photothermique est absolument sans contact et relativement simple à mettre en oeuvre. Compte tenu de nos applications et du type d'échantillons que nous souhaitons étudier, ainsi que de l'expérience de notre équipe dans le domaine de la déflexion photothermique, nous nous proposons de mettre au point un dispositif de microscopie basé sur la déflexion photothermique. Nous allons voir dans le paragraphe suivant quelles sont les conditions pour obtenir une haute résolution avec un tel dispositif.

## 1.4 Faisabilité d'un dispositif d'imagerie haute résolution par déflexion photothermique

Nous allons étudier dans quelles conditions il est possible d'obtenir une résolution sub-micronique avec un dispositif de déflexion photothermique. Nous définirons alors la taille limite d'un défaut détectable grâce à un tel dispositif.

### 1.4.1 Définition de la résolution pour une cartographie et conditions d'optimisation

Nous nous intéressons ici uniquement à la résolution spatiale latérale, et non pas en profondeur. La résolution spatiale latérale d'un dispositif d'imagerie par balayage est classiquement définie, pour une image, comme étant la plus petite distance séparant deux zones de niveau de contraste discernable. Pour une cartographie d'absorption, la résolution est donc le plus petit pas d'échantillonnage pour lequel la différence d'absorption de deux pixels adjacents est au moins égale au bruit en présence de signal.

La résolution est liée au diamètre du faisceau pompe ainsi qu'au bruit du dispositif en présence de signal. Nous allons voir quelles conditions, portant sur ces paramètres, doivent être réunies pour permettre d'obtenir une résolution sub-micronique.

La densité de puissance absorbée mesurée liée à la présence d'une inhomogénéité absorbante est constituée de la convolution entre la fonction décrivant l'inhomogénéité et la fonction d'appareil du dispositif (ici gaussienne de puissance du laser pompe). Pour nous ramener à une densité d'absorption mesurée, nous devons diviser cette fonction de convolution par la puissance incidente.

Soit  $P(r)$  la gaussienne fonction d'appareil du dispositif. Notons  $P_0$  la puissance incidente et  $a$  est le rayon du faisceau à  $1/e^2$ . On a :

$$P(r) = \frac{2P_0}{\pi a^2} \exp\left(\frac{-2r^2}{a^2}\right) \text{ avec } \int P(r) 2\pi r dr = P_0 \quad (1.1)$$

Soit  $DA(r)$  la fonction décrivant la densité d'absorption du défaut. Pour simplifier, nous considérons que la fonction  $DA(r)$  est une fonction Porte de largeur  $b$  égale au diamètre du défaut et vérifiant  $\int DA(r) 2\pi r dr = A$ , où  $A$  est l'absorption totale du défaut.

Considérons un pas d'échantillonnage infiniment petit. La densité d'absorption mesurée  $DA_{mes}(r)$  est donnée par :

$$DA_{mes}(r) = \frac{1}{P_0} \int DA(r_0) P(r - r_0) 2\pi r_0 dr_0 \quad (1.2)$$

Cette définition est un modèle élémentaire basé sur la propriété de la déflexion photothermique d'être proportionnelle à la puissance optique absorbée au niveau local.



Considérons deux cas limites. Tout d'abord, si le diamètre du faisceau pompe est très petit devant le diamètre de l'inhomogénéité, on peut écrire  $DA_{mes}(r)=DA(r)$ . Le cas qui nous intéresse est celui d'une inhomogénéité de diamètre petit devant le diamètre du faisceau pompe. Dans ce cas, on a :

$$DA_{mes}(r) = \frac{A}{P_0}P(r) \quad (1.3)$$

Or la valeur de l'absorption mesurée  $A_{mes}(r)$  est en première approximation considérée comme la valeur de la densité d'absorption mesurée  $DA_{mes}(r)$  intégrée sur la surface éclairée par le faisceau pompe. On a donc :

$$A_{mes}(x) = \frac{\pi a^2}{P_0}AP(r) \quad (1.4)$$

Expérimentalement, lorsque l'on réalise une cartographie, la fonction effectivement mesurée est un échantillonnage de  $A_{mes}(x)$ . La résolution est le plus petit pas d'échantillonnage  $R$  vérifiant :

$$A_{mes}(x + R) - A_{mes}(x) = \Delta A \quad (1.5)$$

où  $\Delta A$  est la fluctuation d'absorption correspondant au bruit en présence de signal.

Le plus petit pas d'échantillonnage  $R$  vérifiant 1.5 est nécessairement défini au niveau de la pente maximale de la gaussienne précédente, c'est à dire pour  $x=\pm a/2$ . On a alors :

$$A_{mes}\left(\frac{a}{2} + R\right) - A_{mes}\left(\frac{a}{2}\right) = \Delta A \quad (1.6)$$

En supposant que l'absorption totale du défaut considéré est élevée (largement supérieure à la détectivité du dispositif), il est possible d'avoir  $R$  petit devant  $a$ . On peut alors écrire :

$$R.A'_{mes}\left(\frac{a}{2}\right) = \Delta A \quad (1.7)$$

$$\Leftrightarrow \frac{4AR}{a\sqrt{e}} = \Delta A \quad (1.8)$$

$$\Leftrightarrow R = a\sqrt{e}\frac{\Delta A}{A} \quad (1.9)$$

Le bruit en présence de signal représente les fluctuations temporelles de signal. L'absorption limite correspondante est d'autant plus élevée que l'absorption totale est élevée. On estime que  $\Delta A=5\%A$  (cf. paragraphe 3.5.2). On obtient :

$$\Leftrightarrow R \sim 8.10^{-2}a \quad (1.10)$$

#### 1.4. FAISABILITÉ D'UN DISPOSITIF D'IMAGERIE HAUTE RÉSOLUTION PAR DÉFLEXION PHOTOTHERMIQUE

---

Nous voyons donc qu'il est possible d'augmenter la résolution (de diminuer  $R$ ) simplement en diminuant la taille du faisceau pompe, c'est à dire en le focalisant. Il est alors possible d'obtenir une résolution sub-micronique. Notons que dans le cas d'un faisceau pompe de diamètre  $1\ \mu\text{m}$ , la résolution limite est de l'ordre de  $100\ \text{nm}$ , avec  $\Delta A=5\%A$ .

Remarquons également qu'il est possible d'obtenir une résolution micronique avec des faisceaux pompes relativement larges, de l'ordre de plusieurs dizaines de microns, comme cela a été montré expérimentalement dans les références [28–30]. Cependant, nous avons fait pour ce calcul une hypothèse forte, qui est que l'absorption totale du défaut considéré est largement supérieure à la détectivité du dispositif. Nous avons calculé la résolution pour le cas classique optimal où le signal mesuré est très nettement au dessus du seuil de détectivité (cas d'un fort contraste). Cependant, ceci ne donne pas la condition de détection d'un défaut isolé dont l'absorption totale est faible, ou du même ordre de grandeur que le seuil de détectivité. Or, l'absorption d'un défaut localisé est liée à sa taille : plus le défaut est petit, plus son absorption totale est faible. Dans ce cas, la condition limite de détection d'un défaut est que son absorption totale soit au moins égale à la détectivité du dispositif. La question de la détection d'un défaut localisé en fonction de sa taille et de son absorption est détaillée au paragraphe suivant.

##### 1.4.2 Application à la détection de nano-défauts

Nous nous proposons de calculer ici l'ordre de grandeur de la taille limite que doit avoir un défaut isolé pour être détectable, compte tenu notamment de son absorption.

Considérons un milieu 1, constitué d'un défaut absorbant présent dans un milieu 0, matrice transparente constituée de verre ou d'une couche diélectrique. En notant  $dV$  un élément de volume, la densité volumique de puissance absorbée par le défaut,  $\frac{dP_A}{dV}$ , est donnée par :

$$\frac{dP_A}{dV} = \text{Re}(\frac{1}{2}j\omega_0\vec{D}_1.\vec{E}_1^*) \quad (1.11)$$

$$\text{avec } \omega_0 = \frac{2\pi c}{\lambda} = \frac{2\pi}{\lambda} \frac{1}{\sqrt{\mu_0\epsilon_0}}.$$

Or dans le cas d'un matériau linéaire,  $\vec{D}_1 = \epsilon_1\vec{E}_1$ , d'où  $\frac{dP_A}{dV} = \frac{1}{2}\omega_0\text{Re}(j\epsilon_1)|E_1|^2$ . De plus,  $\frac{\epsilon_1}{\epsilon_0} = (n_1 - jk_1)^2 = n_1^2 - k_1^2 - 2jn_1k_1$  ( $n$  et  $k$  étant les parties réelle et imaginaire de l'indice complexe du milieu). Finalement, en introduisant le coefficient d'absorption  $\alpha = \frac{4\pi k_1}{\lambda}$ , on obtient :

$$\frac{dP_A}{dV} = \frac{1}{2}\alpha\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}n_1|E_1|^2 \quad (1.12)$$

Introduisons l'intensité électromagnétique incidente moyenne  $P(r)$ , c'est-à-dire la puissance moyenne reçue par le défaut par unité de surface :  $P = \frac{1}{2}\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}n_0|E_0|^2$ .

On peut alors écrire  $\frac{dP_A}{dV}$  sous la forme :

$$\frac{dP_A}{dV} = \alpha \frac{n_1}{n_0} I_0 \frac{|E_1|^2}{|E_0|^2} \quad (1.13)$$

Or, pour un faisceau laser pompe gaussien, de diamètre à  $1/e^2 = 2a$ , de puissance  $P_0$ , modulé à la fréquence  $\nu$ , l'intensité incidente moyenne s'écrit :

$$P(r) = \frac{2P_0}{\pi a^2} e^{-\frac{2r^2}{a^2}} \quad (1.14)$$

On obtient donc, en notant  $S$  la surface à  $1/e^2$  de la gaussienne pompe :

$$\frac{dP_A}{dV} = 2\alpha \frac{n_1}{n_0} \frac{P_0}{S} \frac{|E_1|^2}{|E_0|^2} \quad (1.15)$$

Définissons un facteur moyen  $\beta$  supposé indépendant de  $x$  et  $y$  sur le volume du défaut et prenant en compte les effets d'interférences et de résonance dans le défaut :  $\beta = \frac{|E_1|^2}{|E_0|^2}$ .

On obtient donc :

$$\frac{dP_A}{dV} = 2\alpha \frac{n_1}{n_0} \beta \frac{P_0}{S} \quad (1.16)$$

Soit encore :

$$dP_A = \frac{8\pi}{\lambda} k_1 \frac{n_1}{n_0} \beta \frac{P_0}{S} dV \quad (1.17)$$

Cette expression permet de calculer la puissance absorbée par un défaut de volume  $dV$  et d'indice complexe  $n_1 - jk_1$  en fonction de la densité de puissance incidente par unité de surface  $\frac{P_0}{S}$ . On supposera par la suite que  $n_1 \sim n_0$  et  $\lambda = 1 \mu\text{m}$ .

Considérons que l'on focalise un faisceau pompe de puissance incidente  $P_0 = 100 \text{ mW}$  sur une surface  $S = 1 \text{ mm}^2$ , puis un faisceau pompe de puissance incidente  $P_0 = 10 \text{ mW}$  sur une surface  $S = 1 \mu\text{m}^2$ . On obtient alors des densités de puissance égales à  $10^5 \text{ W/m}^2$  et  $10^{10} \text{ W/m}^2$  respectivement et la puissance  $dP_A$  absorbée par un défaut de volume  $dV$  est :

$$\text{pour } \frac{P_0}{S} = 100 \text{ mW/mm}^2 : dP_A \sim (k_1 \beta dV) \cdot 10^{12} \text{ W/m}^2 \quad (1.18)$$

$$\text{pour } \frac{P_0}{S} = 10 \text{ mW}/\mu\text{m}^2 : dP_A \sim (k_1 \beta dV) \cdot 10^{17} \text{ W/m}^2 \quad (1.19)$$

Dans le tableau 1.1 les puissances absorbées sont données pour 2 tailles de spot du faisceau pompe incident et différentes tailles de particules, avec une valeur unitaire de  $\beta$ .

L'ordre de grandeur de la puissance absorbée ainsi obtenue doit être comparé à la détectivité des dispositifs de déflexion photothermique. Ceci va nous permettre

#### 1.4. FAISABILITÉ D'UN DISPOSITIF D'IMAGERIE HAUTE RÉSOLUTION PAR DÉFLEXION PHOTOTHERMIQUE

	Rayon du défaut			
	500 nm	100 nm	10 nm	1 nm
$P_A$ pour 100 mW/mm <sup>2</sup>	0,5k <sub>1</sub> μW	4k <sub>1</sub> nW	4k <sub>1</sub> pW	4k <sub>1</sub> fW
$P_A$ pour 10 mW/μm <sup>2</sup>	50k <sub>1</sub> mW	0,4k <sub>1</sub> mW	0,4k <sub>1</sub> μW	0,4k <sub>1</sub> nW

TAB. 1.1 – Puissance absorbée pour des défauts de différents rayons, et pour 2 densités de puissance incidente différentes

de définir la taille des plus petits défauts détectables par ces méthodes. Compte tenu des résultats dans les configurations décrites paragraphe 1.3.1 un ordre de grandeur acceptable de détectivité est  $10^{-7}$ . La plus faible puissance absorbée mesurable sera 10 nW, pour une puissance incidente  $P_0 = 100$  mW.

On en déduit que des défauts métalliques, pour lesquels  $k_1$  est de l'ordre de 1 à 10, de taille quelques nanomètres, seront détectables par microscopie photothermique, à condition que le faisceau pompe soit focalisé sur 1 μm<sup>2</sup>. En ce qui concerne les défauts diélectriques, leur détection sera fortement dépendante de leur indice imaginaire. Des défauts diélectriques d'indice imaginaire  $10^{-4}$  et de rayon de l'ordre de 100 nm, par exemple, seront détectables, avec un faisceau pompe de puissance 10 mW focalisé sur 1 μm<sup>2</sup>. Une autre condition est, bien entendu, que des éclairagements énergétiques tels que  $10^{10}$  W/m<sup>2</sup> ( $= 10^{-3}$  GW/cm<sup>2</sup>) ne conduisent pas à un endommagement de type thermique du matériau.

Nous obtenons ici la taille d'un défaut en fonction d'un niveau d'absorption détectable. Dans le cas d'un défaut isolé de diamètre quelques nanomètres ou quelques dizaines de nanomètres et d'absorption égale à la détectivité du dispositif, la taille qui sera expérimentalement associée au défaut sera en fait le diamètre du faisceau pompe. La taille réelle des défauts ne pourra être déduite des mesures qu'en faisant des hypothèses sur la nature des défauts (métaux ou diélectriques par exemple).

Par ailleurs, des défauts pourront être localisés séparément les uns des autres seulement si une distance supérieure au diamètre du faisceau pompe les sépare. Ceci est compatible avec la densité des nano-défauts précurseurs de l'endommagement laser qui a été estimée à quelques défauts par μm<sup>3</sup> [79].

Nous avons vu que la réalisation d'un dispositif de microscopie basé sur la déflexion photothermique et permettant l'obtention d'une haute résolution et la détection de défauts de taille nanométrique imposait un certain nombre de conditions expérimentales :

- focalisation maximale du faisceau pompe
- pas d'échantillonnage minimal
- détectivité maximale

De façon générale, on peut dire que les paramètres de l'expérience qui jouent un rôle dans la capacité d'un dispositif à détecter les défauts les plus petits pos-

sibles sont essentiellement le diamètre du faisceau pompe, le pas d'échantillonnage des cartographies et bien sûr la détectivité, c'est à dire la plus petite absorption mesurable dans les conditions expérimentales utilisées.

Nous allons à présent définir la configuration optimale du dispositif de microscopie, basé sur la déflexion photothermique, permettant de réunir toutes ces conditions.

## 1.5 Choix d'une configuration de déflexion photothermique

Le choix de la configuration optimale se fait grâce à une étude comparative théorique basée sur le calcul de la déflexion en configuration colinéaire et transverse. Notons que la configuration réflexion aurait également pu être prise en considération.

### 1.5.1 Calcul de la déflexion photothermique

Le calcul de la déflexion photothermique peut être divisé en deux parties. Tout d'abord, connaissant la source de chaleur liée à l'absorption optique dans la couche et le substrat, on calcule la distribution de température dans les trois milieux : air, couche et substrat. Ensuite, on peut calculer les effets de cette distribution de température sur la propagation du faisceau sonde et donc la déflexion photothermique.

#### Calcul de la distribution de température

Nous considérons un modèle simple constitué d'une couche unique absorbante déposée sur un substrat non absorbant. Nous supposons qu'il n'y a pas d'absorption aux interfaces. Il est bien sûr possible d'adapter ce modèle au cas des multicouches ou de faire apparaître de l'absorption dans le substrat ou aux interfaces. Nous nous limitons ici au cas le plus simple pour faciliter l'interprétation des résultats.

Les notations utilisées par la suite sont les suivantes :

- $n_i$  et  $k_i$  : parties réelle et imaginaire de l'indice complexe du milieu  $i$
- $K_i$  : conductivité thermique
- $\rho_i$  : masse volumique
- $C_i$  : capacité calorifique par unité de masse
- $\nu$  : fréquence de modulation du faisceau pompe
- $\mu_i$  : longueur de diffusion thermique ( $\mu_i = \sqrt{\frac{K_i}{\rho_i C_i \pi \nu}}$ )
- $\omega = 2\pi\nu$  : pulsation de modulation du faisceau pompe
- $e$  : épaisseur de la couche

## 1.5. CHOIX D'UNE CONFIGURATION DE DÉFLEXION PHOTOTHERMIQUE

---

Les notations sont résumées sur la figure 1.6.

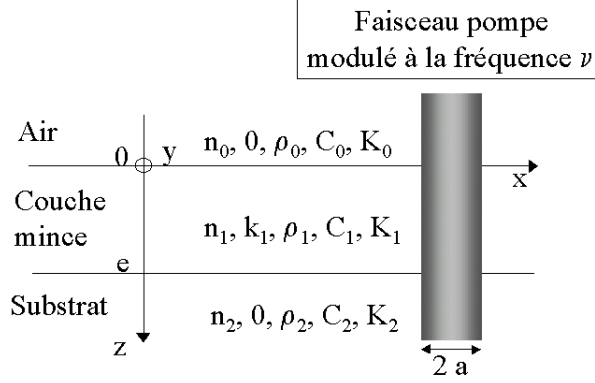


FIG. 1.6 – Modèle étudié et notations utilisées

### HYPOTHÈSES ET ÉQUATIONS

Les hypothèses sont les suivantes :

- les milieux sont infinis dans les directions  $x$  et  $y$
- l'air et le substrat sont infinis dans la direction  $z$  et sont parfaitement transparents
- les faisceaux sonde et pompe sont tous deux localement parallèles. Puisque ces deux faisceaux sont gaussiens et présentent un waist au niveau de la couche, le parallélisme local des faisceaux impose que la longueur de Rayleigh du faisceau pompe soit grande par rapport à l'épaisseur de la zone absorbante et que celle du faisceau sonde soit grande par rapport aux distances sur lesquelles se produit la déflexion. On discutera plus loin de la validité de ces hypothèses
- le diamètre à  $1/e^2$  (noté  $2a$ ) du waist du laser pompe est grand devant celui du laser sonde, au niveau de l'échantillon
- les résistances thermiques interfaciales entre la couche et l'air et entre la couche et le substrat sont négligeables

Le calcul est réalisé pour un faisceau pompe en incidence normale. Nous posons  $r^2 = x^2 + y^2$ .

Soit  $\mathcal{T}_i(r, z, t)$  la température dans le milieu  $i$ . Pour la recherche des solutions, on se place dans le cadre d'un régime permanent établi et on pose :

$$\mathcal{T}_i(r, z, t) = \bar{T}_i + T'_i(r, z) + T_i(r, z, t)$$

Dans cette expression,  $\bar{T}_i$  est la valeur moyenne de la température dans le milieu  $i$  et  $T'_i$  est la distribution de température stationnaire induite par l'irradia-

tion. On supposera dans la suite que les facteurs d'absorption sont faibles. Dans ce cas, les puissances absorbées conduisent à des échauffements stationnaires faibles qui ne modifient que très peu le point de fonctionnement des composants. Les valeurs des paramètres optiques et thermiques utilisés dans nos calculs sont donc celles que ces grandeurs prennent à la température moyenne, prise comme étant la température ambiante.

Les équations gouvernant le phénomène thermique sont posées dans l'hypothèse de transfert purement conductif. En effet, il a été montré dans [80] que :

- les pertes par rayonnement sont toujours négligeables à température ambiante : leur effet ne devient sensible qu'aux températures élevées, de l'ordre de 1000 K.
- l'influence de la convection naturelle dans les fluides ne se manifeste qu'à basse fréquence ( $\simeq 10$  Hz) et lorsque la température stationnaire de l'échantillon est supérieure à celle du fluide de plusieurs centaines de degrés, c'est à dire pour des puissances absorbées d'une dizaine de Watts.

De plus, les déformations thermoélastiques modifient peu la répartition de température due à la diffusion thermique [81].

Dans ces conditions, la distribution de température dans les trois milieux satisfait aux équations de diffusion de la chaleur suivantes :

$$\nabla^2 T_0(r, z, t) - \frac{\rho_0 C_0}{K_0} \cdot \frac{\partial T_0}{\partial t} = 0 \quad (1.20)$$

$$\nabla^2 T_1(r, z, t) - \frac{\rho_1 C_1}{K_1} \cdot \frac{\partial T_1}{\partial t} = -\frac{Q_1(r, z, t)}{K_1} \quad (1.21)$$

$$\nabla^2 T_2(r, z, t) - \frac{\rho_2 C_2}{K_2} \cdot \frac{\partial T_2}{\partial t} = 0 \quad (1.22)$$

Où  $Q_1(r, z, t)$  est la source de chaleur liée à l'absorption optique dans la couche. Il faut ajouter à ces trois équations les conditions aux limites :

- Continuité de la température aux interfaces (résistances thermiques interfaciales négligeables) :

$$T_0(r, z = 0) = T_1(r, z = 0) \quad (1.23)$$

$$T_1(r, z = e) = T_2(r, z = e) \quad (1.24)$$

- Continuité des flux de chaleur :

$$\phi_{C \rightarrow A} = K_0 \frac{\partial T_0}{\partial z} \Big|_{z=0} = K_1 \frac{\partial T_1}{\partial z} \Big|_{z=0} \quad (1.25)$$

$$\phi_{C \rightarrow S} = -K_1 \frac{\partial T_1}{\partial z} \Big|_{z=e} = -K_2 \frac{\partial T_2}{\partial z} \Big|_{z=e} \quad (1.26)$$

## 1.5. CHOIX D'UNE CONFIGURATION DE DÉFLEXION PHOTOTHERMIQUE

---

### SOURCE DE CHALEUR

La source de chaleur s'exprime simplement à partir de la puissance électromagnétique moyenne dissipée par unité de volume dans le milieu diélectrique 1. Reprenons l'expression calculée au paragraphe 1.4.2 :

$$\frac{dP_A}{dV}(x, y, z) = \alpha \frac{n_1}{n_0} P(x, y) \frac{|E_1(x, y, z)|^2}{|E_0(x, y, z)|^2} \quad (1.27)$$

On en déduit l'expression de la source de chaleur :

$$Q_1(x, y, z, t) = \alpha \frac{n_1}{n_0} P(x, y, t) \frac{|E_1(x, y, z)|^2}{|E_0(x, y, z)|^2} \quad (1.28)$$

Le calcul de la source de chaleur liée à l'absorption optique se ramène à celui de la répartition du champ électrique dans l'empilement. Ce calcul est classique. Ce problème n'ayant pas de solution analytique dans le cas général d'un empilement multicouches, il en est de même pour le calcul de la déflexion photothermique. Dans la suite, nous nous limiterons donc ici au cas d'une couche unique, éclairée en incidence normale.

Par ailleurs, la répartition du champ électrique n'est pas sensiblement modifiée par l'absorption de la couche tant que celle-ci reste faible. Pour simplifier nos expressions analytiques du champ électrique, nous supposons donc par la suite que  $k_1 = 0$ . Dans ces conditions, on peut écrire [82] :

$$\frac{|E_1(x, y, z)|^2}{|E_0(x, y, z)|^2} = \left| \frac{E_1}{E_0}(z) \right|^2 = \frac{t_{01}^2}{D^2} \left[ 1 + r_{12}^2 + 2r_{12} \cos \frac{4\pi n_1}{\lambda} (e - z) \right] \quad (1.29)$$

avec  $t_{01} = \frac{2n_0}{n_0 + n_1}$ ,  $r_{12} = \frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2}$ ,  $r_{01} = \frac{n_0 - n_1}{n_0 + n_1}$  et  $D = 1 + r_{01}^2 r_{12}^2 + 2r_{01} r_{12} \cos \frac{4\pi n_1 e}{\lambda}$

Nous poserons par la suite :  $C_1 = t_{01}^2 (1 + r_{12}^2) / D^2$  et  $C_2 = 2t_{01}^2 r_{12}^2 / D^2$ .

On obtient alors :

$$\left| \frac{E_1}{E_0}(z) \right|^2 = C_1 + C_2 \cos \frac{4\pi n_1}{\lambda} (e - z) \quad (1.30)$$

Et en remplaçant  $|E_1/E_2|^2$  par son expression (1.30), la composante sinusoïdale de la source de chaleur s'écrit, en notation complexe :

$$Q_1(r, z, t) = \alpha \frac{n_1}{n_0} \frac{P_0}{\pi a^2} e^{-2\frac{r^2}{a^2}} e^{j\omega t} \left[ C_1 + C_2 \cos \frac{4\pi n_1}{\lambda} (e - z) \right] \quad (1.31)$$

Notons que dans le cas d'une couche mince unique transparente, la source de chaleur s'étend nécessairement sur toute l'épaisseur de la couche.



RÉPARTITION DE TEMPÉRATURE

Pour résoudre le système d'équations différentielles (1.20) (1.21) (1.22), nous nous ramenons à un système d'équations indépendantes en effectuant la transformée de Fourier radiale à 2 dimensions de ces équations.

Nous cherchons des solutions de la forme  $T_i(r, z, t) = T_i(r, z)e^{j\omega t}$  où  $T_i(r, z)$  est l'amplitude complexe de la partie sinusoïdale dans le temps. Puisque sont uniquement détectées les grandeurs dans le temps, seules les solutions  $T_i(r, z)$  seront calculées. Soit  $\tilde{T}_i(\sigma, z)$  la transformée de Fourier radiale à 2 dimensions de  $T_i(r, z)$ , telle que :

$$T_i(r, z) = 2\pi \int_0^\infty \sigma J_0(2\pi\sigma r) \tilde{T}_i(\sigma, z) d\sigma \quad (1.32)$$

$J_0$  est la fonction de Bessel d'ordre 0 et  $\sigma$  la variable conjuguée de  $r$ .

La transformée de Fourier en  $r$  des équations (1.20) (1.21) (1.22) donne alors :

$$\frac{\partial^2 \tilde{T}_0}{\partial z^2}(\sigma, z) - \alpha_0^2(\sigma) \tilde{T}_0(\sigma, z) = 0 \quad (1.33)$$

$$\frac{\partial^2 \tilde{T}_1}{\partial z^2}(\sigma, z) - \alpha_1^2(\sigma) \tilde{T}_1(\sigma, z) = -R[C_1 + C_2 \cos \frac{4\pi n_1}{\lambda}(e - z)]e^{-\frac{a^2 \sigma^2 \pi^2}{2}} \quad (1.34)$$

$$\frac{\partial^2 \tilde{T}_2}{\partial z^2}(\sigma, z) - \alpha_2^2(\sigma) \tilde{T}_2(\sigma, z) = 0 \quad (1.35)$$

avec  $\alpha_i^2(\sigma) = 4\pi^2 \sigma^2 + \frac{2j}{\mu_1}$  et  $R = \frac{P_0}{2K_1} \frac{n_0}{n_1} \alpha$

La solution générale des équations homogènes est de la forme :  $A_i e^{\alpha_i z} + B_i e^{-\alpha_i z}$ . De plus,  $T_2$  est nulle en  $z = +\infty$  et  $T_0$  est nulle en  $z = -\infty$ , donc  $A_2(\sigma) = B_0(\sigma) = 0$ .

On en déduit les expressions des transformées de Fourier des températures dans les trois milieux :

$$\tilde{T}_0(\sigma, z) = A_0(\sigma) e^{\alpha_0 z} \quad (1.36)$$

$$\tilde{T}_1(\sigma, z) = A_1(\sigma) e^{\alpha_1 z} + B_1(\sigma) e^{-\alpha_1 z} + H_1(\sigma) + H_2(\sigma) \cos \frac{4\pi n_1}{\lambda}(e - z) \quad (1.37)$$

$$\tilde{T}_2(\sigma, z) = B_2(\sigma) e^{-\alpha_2(z-e)} \quad (1.38)$$

où  $H_1(\sigma) = C_1 R \frac{e^{-a^2 \sigma^2 \pi^2 / 2}}{\alpha_1^2(\sigma)}$ ,  $H_2(\sigma) = C_2 R \frac{e^{-a^2 \sigma^2 \pi^2 / 2}}{\alpha_1^2(\sigma) + (\frac{4\pi n_1}{\lambda})^2}$

et  $A_0(\sigma), A_1(\sigma), B_1(\sigma), B_2(\sigma)$  sont des fonctions que l'on détermine grâce aux conditions limites (1.23), (1.24), (1.25) et (1.26).

Le calcul de ces paramètres montre que le terme  $R = \frac{P_0}{2K_1} \frac{n_0}{n_1} \alpha$  est en facteur dans les expressions de la distribution de température pour les trois milieux. Les paramètres  $P_0$  et  $k_1$  (dans  $\alpha = \frac{4\pi k_1}{\lambda}$ ) n'intervenant que dans  $R$ , la distribution de température dans les trois milieux est donc toujours proportionnelle à la puissance totale  $P_0$  du faisceau excitateur et au coefficient d'extinction  $k_1$  de la couche.

### Calcul des déflexions en configuration colinéaire et transverse

On peut calculer l'effet des distributions de température sur la propagation du faisceau sonde.

L'indice de réfraction des matériaux est en général fonction de la température et de la pression. Les variations d'indice induites par les ondes thermiques et acoustiques provoquent donc une déviation du faisceau sonde. Il a été montré que l'effet de l'onde acoustique est négligeable par rapport à celui de l'onde thermique dont on vient de calculer la distribution de température [81].

Les déviations mesurées sont faibles, en général inférieures à  $10^{-4}$  radian. Dans le cas d'un laser pompe faiblement focalisé, de longueur d'onde  $1 \mu\text{m}$  et de diamètre à  $1/e^2$   $100 \mu\text{m}$ , on peut considérer que le faisceau sonde interagit avec le milieu actif sur une longueur de  $1 \text{ cm}$ . Le déplacement total correspondant du faisceau sonde dans le milieu actif est alors de  $1 \mu\text{m}$ . Par contre, dans le cas d'un laser pompe fortement focalisé, de diamètre à  $1/e^2 = 1 \mu\text{m}$ , on considérera que le faisceau sonde interagit avec le milieu actif sur une longueur de  $1 \mu\text{m}$ . Le déplacement total correspondant du faisceau sonde dans le milieu actif est alors de  $0.1 \text{ nm}$ . Dans les 2 cas, le déplacement total du faisceau sonde est faible par rapport au diamètre du faisceau pompe focalisé.

Dans ces conditions, la trajectoire du centre du faisceau gaussien sonde est donnée par les lois de l'optique géométrique [9, 10, 83]. Sa déviation n'est due qu'à la composante du gradient d'indice normale à la trajectoire du faisceau et est régie par l'équation du rayon :

$$\frac{d}{ds} \left( n \frac{d\vec{OM}}{ds} \right) = \vec{grad}n \quad (1.39)$$

où  $s$  est l'abscisse curviligne du point  $M$  de la trajectoire,  $\vec{OM}$  le vecteur position et  $n$  l'indice de réfraction en  $M$ .

#### CONFIGURATION COLINÉAIRE

Dans ce cas, le faisceau sonde est supposé colinéaire au faisceau pompe c'est-à-dire perpendiculaire à la surface de l'échantillon et se propage suivant l'axe ( $Oz$ ).

Nous nous intéressons aux composantes  $d\theta_x$  et  $d\theta_y$  de l'angle de déviation élémentaire, suivant l'axe ( $Ox$ ) et ( $Oy$ ) respectivement. Comme les déviations

sont très faibles, on confondra l'abscisse curviligne  $s$  avec  $z$  sur toute la zone d'interaction du rayon avec le gradient d'indice. On obtient alors :

$$d\theta x = \frac{1}{n} \frac{\partial n}{\partial x} dz \text{ et } d\theta y = \frac{1}{n} \frac{\partial n}{\partial y} dz \quad (1.40)$$

Dans le montage nous mesurons uniquement la déviation du faisceau selon l'axe (Oy). Soit  $p$  la pression instantanée en M due à l'onde acoustique, on a :

$$d\theta y = \frac{1}{n} \left( \frac{\partial n}{\partial T} \frac{\partial T}{\partial y} + \frac{\partial n}{\partial p} \frac{\partial p}{\partial y} \right) dz \quad (1.41)$$

Et finalement, si nous négligeons l'effet de l'onde acoustique :

$$d\theta y = \frac{1}{n} \frac{\partial n}{\partial T} \frac{\partial T}{\partial y} dz \quad (1.42)$$

Il reste à intégrer cette déflexion par rapport à  $z$ , dans chaque milieu : air, couche, substrat.

Le centre du faisceau pompe étant au point O dans le plan xOy (en  $z=0$ ) et celui du faisceau sonde étant au point  $(x_0, y_0)$ , on obtient les expressions suivantes pour les déviations totales dans les 3 milieux, en fonction de  $x_0, y_0$  :

$$\theta y_{air}(x_0, y_0, t) = \frac{1}{n_0} \frac{\partial n_0}{\partial T} \int_{-\infty}^0 \left( \frac{\partial T_0}{\partial y}(x, y, z, t) \right)_{x=x_0, y=y_0} dz \quad (1.43)$$

$$\theta y_{couche}(x_0, y_0, t) = \frac{1}{n_1} \frac{\partial n_1}{\partial T} \int_0^e \left( \frac{\partial T_1}{\partial y}(x, y, z, t) \right)_{x=x_0, y=y_0} dz \quad (1.44)$$

$$\theta y_{substrat}(x_0, y_0, t) = \frac{1}{n_2} \frac{\partial n_2}{\partial T} \int_e^{+\infty} \left( \frac{\partial T_2}{\partial y}(x, y, z, t) \right)_{x=x_0, y=y_0} dz \quad (1.45)$$

Compte tenu des distributions de température données par les équations (1.36) (1.37) et (1.38), les expressions des déflexions prennent la forme :

$$\theta y_{air}(x_0, y_0, t) = -\frac{1}{n_0} \frac{\partial n_0}{\partial T} 4\pi^2 e^{j\omega t} \frac{y_0}{r_0} \int_0^\infty \sigma^2 J_1(2\pi\sigma r_0) \frac{A_0(\sigma)}{\alpha_0(\sigma)} d\sigma \quad (1.46)$$

$$\begin{aligned} \theta y_{couche}(x_0, y_0, t) = & -\frac{1}{n_1} \frac{\partial n_1}{\partial T} 4\pi^2 e^{j\omega t} \frac{y_0}{r_0} \int_0^\infty \sigma^2 J_1(2\pi\sigma r_0) \cdot \\ & \left( \frac{A_1(\sigma)}{\alpha_1(\sigma)} (e^{\alpha_1 e} - 1) + \frac{B_1(\sigma)}{\alpha_1(\sigma)} (1 - e^{\alpha_1 e}) + H_1(\sigma) + H_2(\sigma) \frac{\lambda}{4\pi n_1} \sin \frac{4\pi n_1 e}{\lambda} \right) d\sigma \end{aligned} \quad (1.47)$$

$$\theta y_{substrat}(x_0, y_0, t) = -\frac{1}{n_2} \frac{\partial n_2}{\partial T} 4\pi^2 e^{j\omega t} \frac{y_0}{r_0} \int_0^\infty \sigma^2 J_1(2\pi\sigma r_0) \frac{B_2(\sigma)}{\alpha_2(\sigma)} d\sigma \quad (1.48)$$

## 1.5. CHOIX D'UNE CONFIGURATION DE DÉFLEXION PHOTOTHERMIQUE

---

où  $r_0^2 = x_0^2 + y_0^2$  et  $J_1$  est la fonction de Bessel d'ordre 1.

Comme pour les distributions de température, on peut souligner qu'apparaît en facteur le terme  $R = \frac{P_0}{2K_1} \frac{n_0}{n_1} \alpha$ . Les paramètres  $P_0$  et  $k_1$  (dans  $\alpha = \frac{4\pi k_1}{\lambda}$ ) n'intervenant que dans  $R$ , la déflexion totale est donc toujours proportionnelle à la puissance totale  $P_0$  du faisceau excitateur et au coefficient d'extinction  $k_1$  de la couche.

### CONFIGURATION TRANSVERSE

Dans ce cas, le faisceau sonde est perpendiculaire au faisceau pompe c'est-à-dire colinéaire à la surface de l'échantillon et se propage suivant l'axe (Ox).

Nous nous intéressons aux composantes  $d\theta_y$  et  $d\theta_z$  de l'angle de déviation élémentaire, suivant l'axe (Oy) et (Oz) respectivement. Comme les déviations sont très faibles, on confondra l'abscisse curviligne  $s$  avec  $x$  sur toute la zone d'interaction du rayon avec le gradient d'indice. On obtient alors :

$$d\theta_y = \frac{1}{n} \frac{\partial n}{\partial y} dx \quad (1.49)$$

et

$$d\theta_z = \frac{1}{n} \frac{\partial n}{\partial z} dx \quad (1.50)$$

Nous nous intéressons uniquement à la déviation du faisceau selon l'axe (Oz). En négligeant l'effet de l'onde acoustique, on a :

$$d\theta_z = \frac{1}{n} \frac{\partial n}{\partial T} \frac{\partial T}{\partial z} dx \quad (1.51)$$

Il reste à intégrer cette déflexion par rapport à  $x$ , dans l'air.

Nous considérons toujours que le centre du faisceau pompe est au point O dans le plan xOy (en  $z=0$ ). Le faisceau sonde, lui, se propage à une distance  $z_0$  de la surface de l'échantillon. On obtient alors les expressions suivantes pour la déviation dans l'air, en fonction de  $y_0, z_0$  :

$$\theta_{z_{air}}(y_0, z_0, t) = \frac{1}{n_0} \frac{\partial n_0}{\partial T} \int_{-\infty}^{+\infty} \left( \frac{\partial T_0}{\partial y}(x, y, z, t) \right)_{x=x_0, y=y_0} dx \quad (1.52)$$

Soit, compte tenu de la distribution de température donnée par l'équation (1.36) :

$$\theta_{z_{air}}(y_0, z_0, t) = -\frac{1}{n_0} \frac{\partial n_0}{\partial T} \int_{-\infty}^{+\infty} \left( \int_0^\infty 2\pi\sigma A_0(\sigma) \alpha_0(\sigma) e^{\alpha_0(\sigma)z_0} J_0(2\pi\sigma\sqrt{x^2 + y_0^2}) d\sigma \right) dx \quad (1.53)$$

### 1.5.2 Comparaison des deux configurations

Pour choisir la configuration à adopter pour le dispositif expérimental, nous allons étudier la déflexion photothermique obtenue pour chacune des configurations. Nous distinguerons le cas d'un faisceau pompe large, utilisé pour des mesures de photothermie classique, du cas d'un faisceau pompe fortement focalisé, en vue de faire de la microscopie photothermique haute résolution. Nous pourrons alors choisir la configuration qui s'adapte le mieux à nos applications.

Les calculs présentés par la suite sont obtenus avec les valeurs des paramètres classiquement utilisées. Ces valeurs sont résumées dans le tableau 1.2.

	e (nm)	n	k	K (W/m.K) [59, 84]	$\rho C$ [85]	$\frac{1}{n} \frac{\partial n}{\partial T}$ [86]
air	$\infty$	1	0	0,0253	$1,22.10^3$	$-1,1.10^{-6}$
couche mince	500	2,3	$10^{-4}$	0.1	$10^6$	$2.10^{-5}$
substrat	$\infty$	1,46	0	1,379	$1,63.10^6$	$6,8.10^6$

TAB. 1.2 – Valeurs des paramètres classiquement utilisées

Les valeurs du coefficient thermique de l'indice de réfraction ( $\frac{1}{n} \frac{\partial n}{\partial T}$ ) dans les couches minces sont mal connues et seules quelques valeurs peuvent être trouvées dans la littérature. Le signe aussi bien que la valeur absolue de ce paramètre sont différents de ceux du matériau massif associé.

Le signal est en général plus élevé à basse fréquence de modulation. Nous avons effectué ces calculs à 30 Hz, de manière à obtenir une déflexion élevée. La question de l'influence de la fréquence sur la déflexion photothermique est détaillée paragraphe 1.5.3.

#### Cas d'un faisceau pompe large

Nous avons tout d'abord calculé la déflexion photothermique pour un faisceau large, de diamètre à  $1/e^2$  égal à  $100 \mu\text{m}$ , pour le cas de la configuration colinéaire et transverse. Le module de la déflexion pour les deux configurations est calculé en fonction du décalage entre le faisceau pompe et le faisceau sonde. Les résultats sont représentés figure 1.7.

Nous avons vu dans le paragraphe 1.5.1 que la déflexion en mode colinéaire est proportionnelle à la dérivée de la distribution de température. Nous retrouvons donc ici l'allure caractéristique de la dérivée d'une gaussienne. Le maximum de la déflexion se produit pour un décalage entre les faisceaux pompe et sonde égal à  $35 \mu\text{m}$ . Il vaut alors  $\theta_{Max} = 4.10^{-4}$  mrad.

En mode transverse, par contre, le maximum se produit lorsque les faisceaux pompe et sonde sont parfaitement centrés. Ce maximum dépend fortement de la position en  $z_0$  du faisceau sonde : plus le faisceau sonde est proche de la surface de l'échantillon, plus la déflexion est importante.

## 1.5. CHOIX D'UNE CONFIGURATION DE DÉFLEXION PHOTOTHERMIQUE

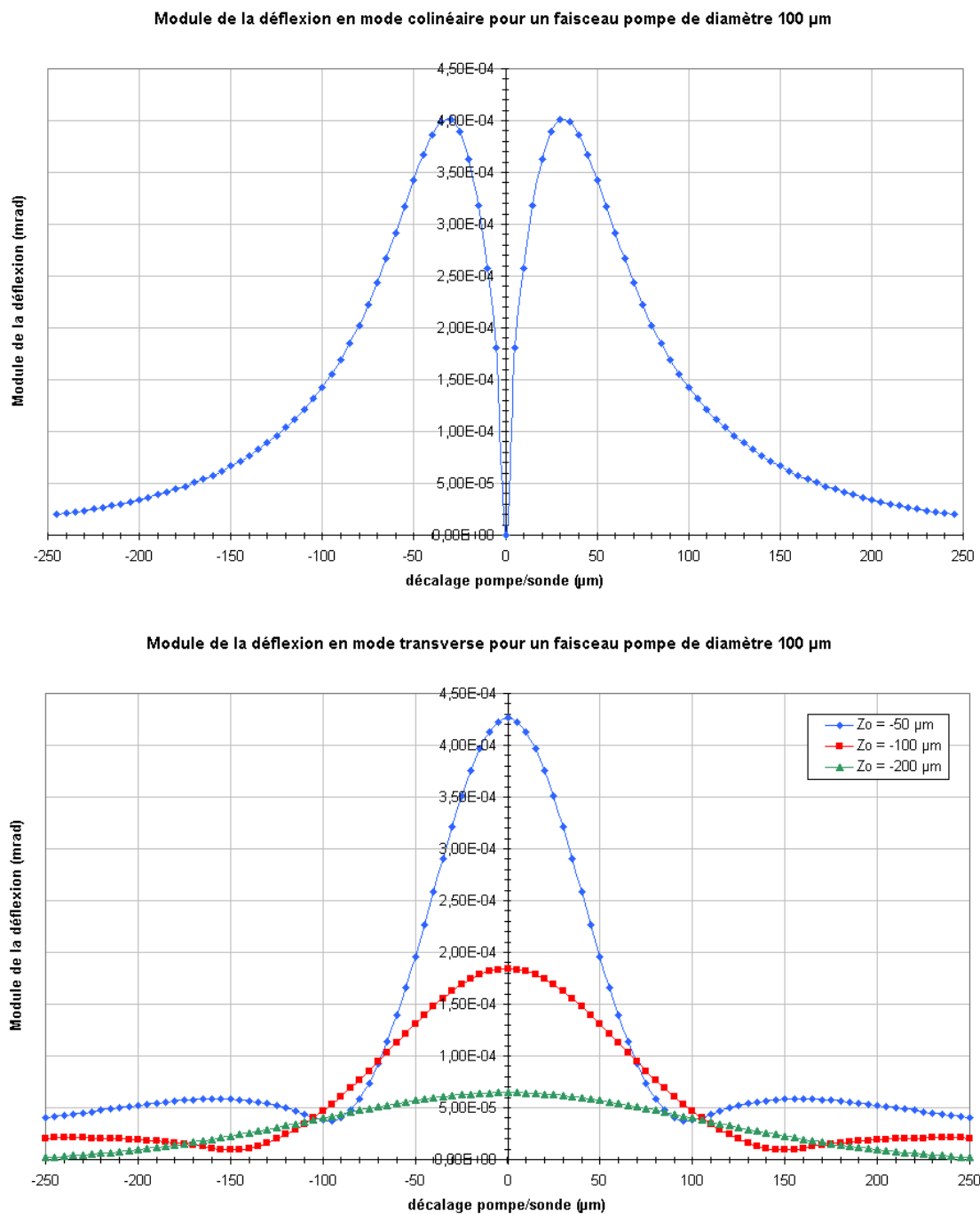


FIG. 1.7 – Module de la déflexion photothermique, calculé à basse fréquence de modulation, en mode colinéaire et transverse pour un faisceau pompe de diamètre à  $1/e^2$  égal à 100  $\mu\text{m}$

Le maximum de la déflexion est du même ordre de grandeur que dans le cas précédent lorsque le faisceau sonde est distant de  $50 \mu\text{m}$  de la surface de l'échantillon ; il lui est environ deux fois inférieur lorsque le faisceau sonde est distant de  $100 \mu\text{m}$  de la surface de l'échantillon.

Par ailleurs, nous observons, dans le cas de la configuration transverse, que l'amplitude de la déflexion présente un maximum secondaire pour les faibles valeurs de  $z_0$ . Ce maximum secondaire se déplace vers les  $y_0$  croissants lorsque  $z_0$  augmente, puis disparaît. Ce phénomène est expliqué dans la référence [10].

La longueur de diffusion thermique dans l'air  $\mu_0$  vaut environ 10 fois celle de la couche  $\mu_1$ . On en déduit donc que pour de faibles valeurs de  $z_0$ , le flux de chaleur dominant va de la couche vers l'air si  $y_0 < \mu_1$  et de l'air vers la couche si  $y_0 > \mu_1$ , et la déflexion photothermique prend une valeur minimale lorsque ces 2 flux se compensent.

Lorsque  $z_0$  augmente, le diamètre de la zone chauffée dans l'air diminue ; il faut donc s'éloigner davantage du centre de la zone chauffée pour observer l'inversion du flux de chaleur. C'est la raison pour laquelle quand  $z_0$  augmente, le maximum secondaire se déplace vers les  $y_0$  croissants. Lorsque  $z_0$  approche de  $\mu_0$ , le faisceau sonde ne "voit" plus que le flux de chaleur allant de la couche vers l'air et le maximum secondaire disparaît.

Expérimentalement, la distance  $z_0$  entre le faisceau sonde et la surface de l'échantillon est limitée par la divergence du faisceau  $Div$  et le diamètre  $\phi$  de l'échantillon, comme le montre la figure 1.8.

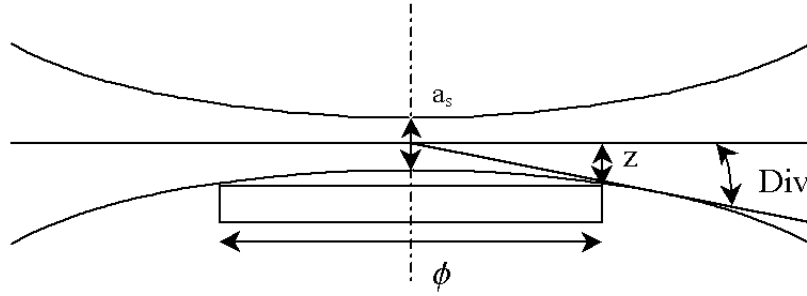


FIG. 1.8 – Distance  $z$  entre le faisceau sonde et la surface de l'échantillon

On doit avoir :

$$z > \frac{\phi}{2} \tan Div \quad (1.54)$$

Or

$$Div = \frac{2\lambda_s}{\pi a_s} \quad (1.55)$$

Où  $a_s$  est le diamètre du waist à  $1/e^2$  du laser sonde et  $\lambda_s$  sa longueur d'onde.

Donc finalement, on doit avoir :

$$z > \phi \frac{\lambda_s}{\pi a_s} \quad (1.56)$$

Par exemple, pour  $\phi = 50$  mm,  $a_s = 100$   $\mu\text{m}$  et  $\lambda_s = 633$  nm, la distance limite obtenue est environ  $z = 100$   $\mu\text{m}$ . Nous considérerons donc cette valeur comme la limite réalisable expérimentalement.

Finalement, dans ces conditions, les configurations colinéaire et transverse sont sensiblement équivalentes. Nous allons à présent étudier l'évolution de la déflexion dans les deux configurations lorsqu'on focalise le faisceau pompe. Nous en déduirons quelle est la configuration la mieux adaptée à la réalisation d'un système de microscopie photothermique.

### Cas d'un faisceau pompe focalisé

Dans le cas de faisceaux fortement focalisés, les longueurs de Rayleigh des faisceaux se réduisent considérablement. Par exemple, si on considère un faisceau de longueur d'onde 1  $\mu\text{m}$  et de diamètre de waist à  $1/e^2$  égal à 1  $\mu\text{m}$ , on obtient une longueur de Rayleigh de l'ordre de 1  $\mu\text{m}$ . Cela signifie tout d'abord que dans le cas traité précédemment d'une couche mince absorbante d'épaisseur 500 nm, déposée sur un substrat transparent, l'expression "cylindrique" de la source de chaleur n'est plus exacte. En effet, le diamètre du faisceau pompe varie de façon significative dans la profondeur de la couche.

Cependant, les calculs faits avec le modèle présenté constituent une première approche et les résultats expérimentaux sont en concordance avec les simulations (cf paragraphe 3.5.2). De plus nous verrons que la focalisation du faisceau sonde va être critique. Nous reviendrons sur ce point ultérieurement.

La déflexion photothermique a été calculée pour un faisceau pompe focalisé, de diamètre à  $1/e^2$  égal à 1  $\mu\text{m}$ , dans les configurations colinéaire et transverse. Le module de la déflexion pour les deux configurations est calculé en fonction du décalage entre le faisceau pompe et le faisceau sonde. Les résultats sont représentés figure 1.9.

Dans le cas de la configuration colinéaire, une augmentation considérable du maximum de déflexion se produit : on a à présent  $\text{Max} = 0,59$  mrad. La déflexion maximale a donc été multipliée par plus de 1000.

Par contre, dans le cas de la configuration transverse, la déflexion maximale est toujours de l'ordre de quelques  $10^{-4}$  mrad pour une distance faisceau sonde-échantillon égale à 50  $\mu\text{m}$  ; elle est seulement de l'ordre de  $10^{-5}$  mrad pour une distance sonde-échantillon égale à 100  $\mu\text{m}$  et 200  $\mu\text{m}$ . Elle serait bien sûr supérieure pour des distances faisceau sonde-échantillon inférieures, mais nous avons vu au paragraphe précédent que cette configuration était impossible à réaliser expérimentalement.



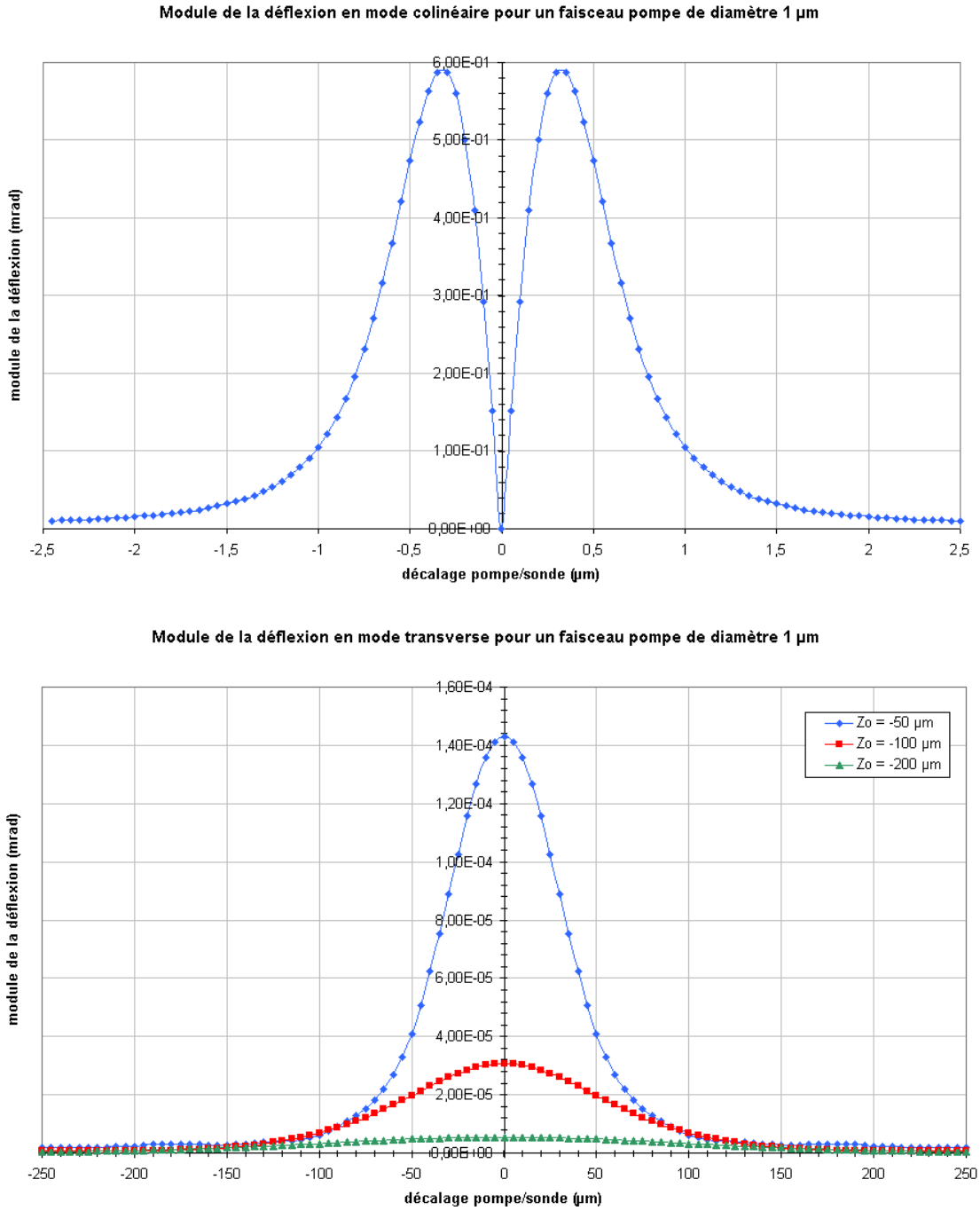


FIG. 1.9 – Module de la déflexion photothermique en mode colinéaire et transverse, calculé à basse fréquence de modulation, pour un faisceau pompe de diamètre à  $1/e^2$  égal à  $1 \mu\text{m}$

### 1.5. CHOIX D'UNE CONFIGURATION DE DÉFLEXION PHOTOTHERMIQUE

---

Si les deux configurations paraissaient être équivalentes dans le cas d'un faisceau pompe de diamètre  $100\ \mu\text{m}$ , nous voyons que dans le cas d'un faisceau pompe de diamètre  $1\ \mu\text{m}$ , la configuration colinéaire présente un net avantage par rapport à la configuration transverse : la déflexion maximale est considérablement plus élevée, donc la sensibilité d'un dispositif expérimental basé sur cette configuration est bien meilleure que pour la configuration transverse.

Cependant, nous avons considéré pour ces calculs le diamètre du faisceau sonde petit devant celui du faisceau pompe. Cette condition est indispensable pour obtenir une haute sensibilité dans cette configuration car un élargissement du faisceau sonde conduit inévitablement à une diminution de la sensibilité du dispositif. Le faisceau sonde devra donc également être fortement focalisé. Il faudra donc mettre en place un dispositif expérimental basé sur la configuration colinéaire et permettant à la fois une forte focalisation des faisceaux pompe et sonde, si l'on veut avoir à la fois une haute résolution et une bonne sensibilité. La focalisation de ces faisceaux nécessite l'utilisation d'objectifs de grandissement  $\times 100$  qui sont très encombrants du fait de leur grande ouverture numérique. Les faisceaux pompe et sonde devront donc être obligatoirement focalisés à travers le même objectif du fait de l'encombrement. Cela signifie que les faisceaux seront quasiment colinéaires. On notera que la longueur de Rayleigh du faisceau sonde sera donc du même ordre de grandeur que celle du faisceau pompe.

De plus, on remarque que dans cette configuration, le signal maximum est obtenu pour un décalage entre les faisceaux pompe et sonde de l'ordre de  $0,3\ \mu\text{m}$ . Nous devons donc prévoir, sur notre montage, un système de déplacement des faisceaux pompe et sonde permettant un positionnement des taches de focalisation des lasers sur l'échantillon dont la précision est compatible avec ces ordres de grandeurs. Une précision d'au moins  $0,1\ \mu\text{m}$  nous semble absolument nécessaire.

Finalement, le choix de la configuration colinéaire pour la réalisation d'un dispositif de microscopie haute résolution impose deux conditions expérimentales supplémentaires :

- focalisation du faisceau sonde, pour conserver une haute sensibilité
- utilisation d'un système de déplacement des lasers permettant leur positionnement avec une précision d'au moins  $0,1\ \mu\text{m}$ , pour obtenir un signal maximal

Nous allons à présent nous intéresser aux effets de la focalisation du faisceau pompe sur la déflexion dans l'air, dans la couche et dans le substrat.

### 1.5.3 Effets de la focalisation du faisceau pompe

Nous nous proposons de réaliser un dispositif de microscopie par déflexion photothermique en configuration colinéaire pour lequel une haute résolution spatiale latérale est rendue possible grâce à la forte focalisation du faisceau pompe.

Or, dans cette configuration, on observe des changements de comportement du signal photothermique. Ces phénomènes sont associés au fait que le transfert de chaleur dans les 3 dimensions est réduit du fait de la diminution de la surface externe de la source de chaleur liée à la focalisation du faisceau pompe.

Pour comprendre la nature de ces phénomènes et éviter toute erreur d'interprétation des mesures, nous étudions la réponse de l'échantillon lorsqu'on focalise fortement le faisceau pompe.

#### Déflexion dans les trois milieux : air, couche, substrat

Nous avons vu dans le paragraphe 1.5.1 que dans le cas de la configuration colinéaire, la déflexion totale était la somme des déflexions complexes dans les trois milieux traversés : air, couche mince et substrat. Nous allons à présent nous intéresser au rôle joué par ces trois milieux en fonction de la focalisation.

La figure 1.10 présente l'évolution du maximum de la déflexion totale et dans les trois milieux en fonction de la focalisation.

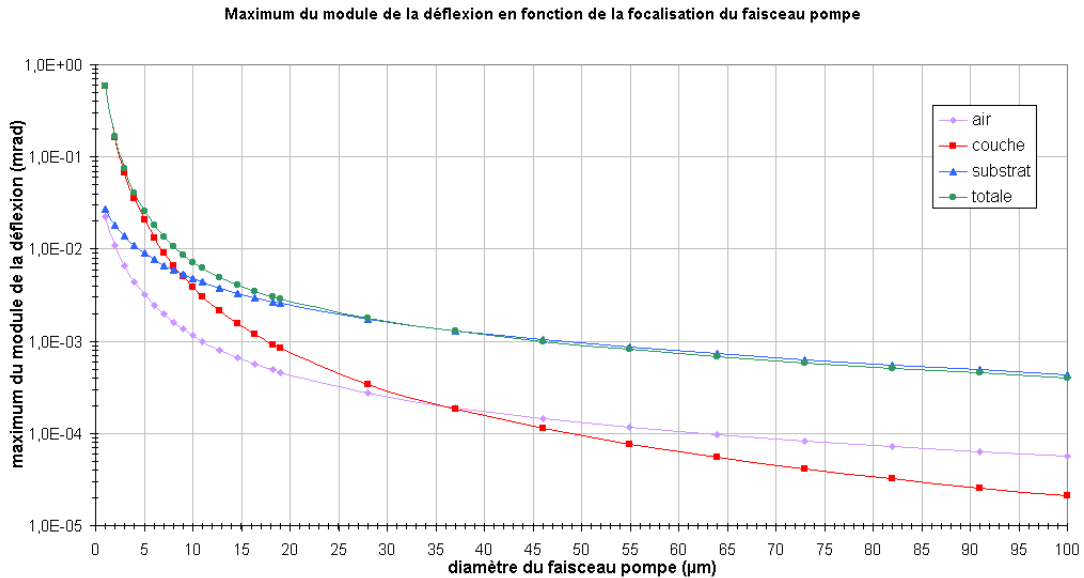


FIG. 1.10 – Evolution du maximum de la déflexion photothermique en fonction du diamètre du faisceau pompe

Nous observons sur ce graphe le résultat présenté précédemment : la déflexion totale augmente avec la focalisation. La déflexion dans l'air est constamment inférieure d'environ une décade ; sa contribution est toujours négligeable.

### 1.5. CHOIX D'UNE CONFIGURATION DE DÉFLEXION PHOTOTHERMIQUE

---

Il n'en est pas de même pour les déflexions dans le substrat et dans la couche. Pour des faisceaux larges, de diamètre à  $1/e^2$  supérieurs à  $20\ \mu\text{m}$ , la déflexion dans le substrat est largement prépondérante devant la déflexion dans la couche. Celle-ci est très faible, inférieure à la déflexion dans l'air. Le phénomène s'inverse lorsque le diamètre du faisceau pompe atteint une dizaine de microns : les déflexions dans le substrat et dans la couche sont alors équivalentes. Lorsque le diamètre du faisceau pompe devient inférieur à  $5\ \mu\text{m}$ , c'est alors la déflexion dans la couche qui devient prépondérante.

Les déflexions dans les trois milieux sont représentées en fonction du décalage entre les faisceaux pompe et sonde pour un faisceau pompe de diamètre  $100\ \mu\text{m}$  et  $1\ \mu\text{m}$  (figure 1.11).

On voit donc que quel que soit le décalage entre les faisceaux pompe et sonde, la contribution du substrat est prédominante dans le cas d'un faisceau de diamètre  $100\ \mu\text{m}$ , tandis que c'est la contribution de la couche qui est prédominante dans le cas d'un faisceau de diamètre  $1\ \mu\text{m}$ .

Dans le cas d'un faisceau pompe fortement focalisé, les propriétés de la couche, en particulier l'épaisseur, les propriétés thermiques ainsi que le coefficient thermique de l'indice de réfraction, jouent un rôle considérable sur la déflexion totale mesurée. Ceci est particulièrement intéressant si on cherche à connaître les propriétés thermiques des couches minces étudiées.

Par contre, ce phénomène pose un problème pour l'étalonnage des cartographies en termes de facteur d'absorption. En effet, classiquement, pour réaliser l'étalonnage, on néglige l'influence des propriétés thermiques pour ne considérer que l'absorption du matériau étudié. Dans le cas d'un faisceau pompe fortement focalisé la déflexion photothermique permet d'imager les inhomogénéités de l'absorption de l'échantillon. Cependant, elle ne permet pas de discriminer les contributions des différents paramètres qui jouent un rôle sur le signal photothermique tels que propriétés thermiques et thermo-optiques de la couche, notamment. Il est important de souligner que dans ces conditions, l'étalonnage des cartographies en absorption n'a pas grande signification. La question de l'étalonnage est détaillée au paragraphe 3.3.3.

Une autre conséquence importante est que si la déflexion du faisceau sonde est prépondérante dans la couche, alors le point de focalisation du faisceau sonde doit se situer au niveau de la couche, exactement comme celui du faisceau pompe. Nous verrons qu'expérimentalement, le réglage des focalisations des faisceaux est un point critique.

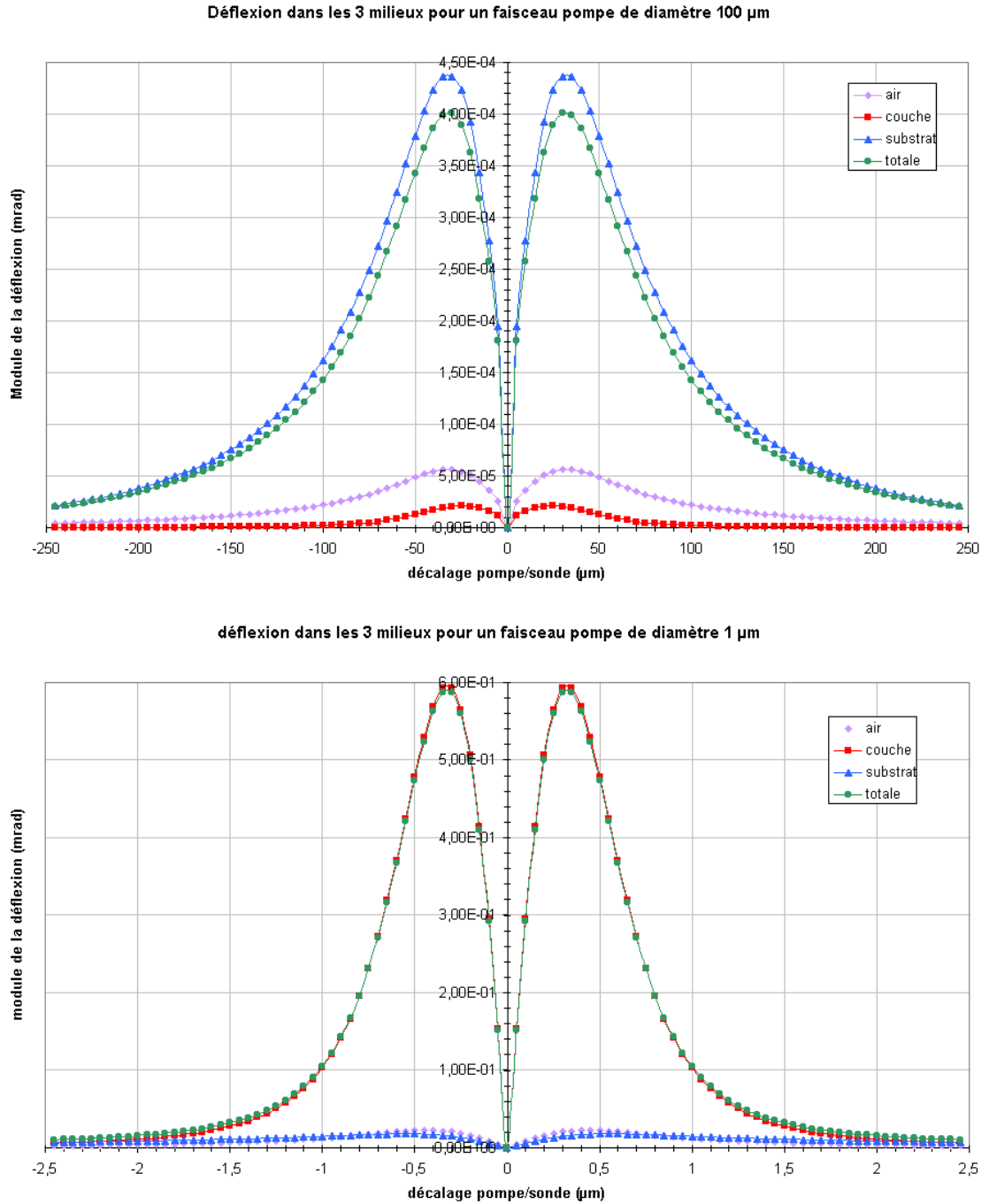


FIG. 1.11 – Déflexion photothermique totale et dans les 3 milieux en fonction du décalage entre les faisceaux pompe et sonde pour un faisceau pompe de diamètre 100  $\mu\text{m}$  et 1  $\mu\text{m}$

### Influence de la fréquence

A nouveau, nous observons que la déflexion photothermique se comporte différemment suivant que le faisceau pompe est très focalisé ou non. La déflexion photothermique en fonction de la fréquence de modulation est représentée figure 1.12 pour un faisceau pompe de diamètre  $100\ \mu\text{m}$  et  $1\ \mu\text{m}$ . Ce calcul a été réalisé en choisissant le décalage entre le faisceau pompe et le faisceau sonde de manière à maximiser la déflexion à basse fréquence. Ce décalage est de  $35\ \mu\text{m}$  pour le faisceau pompe de diamètre  $100\ \mu\text{m}$  et de  $0,3\ \mu\text{m}$  pour le faisceau pompe de diamètre  $1\ \mu\text{m}$ .

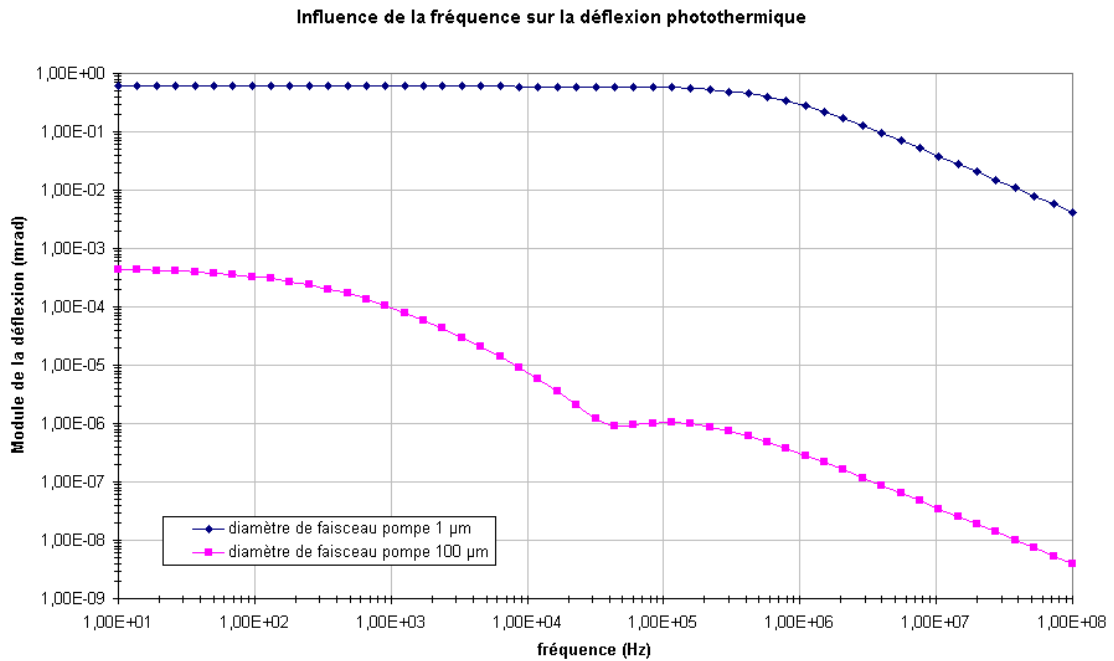


FIG. 1.12 – Evolution du maximum de la déflexion avec la fréquence pour 2 diamètres de faisceau pompe différents

Dans le cas d'un faisceau large, nous observons que la déflexion décroît rapidement dès que la fréquence de modulation augmente. Ce n'est pas le cas pour un faisceau fortement focalisé. Dans le cas d'un faisceau de diamètre  $1\ \mu\text{m}$ , la déflexion ne commence à décroître qu'à partir de  $100\ \text{kHz}$ . Ces résultats ont été vérifiés expérimentalement. Ils sont présentés au paragraphe 3.5.2.

On remarque que la déflexion, pour un faisceau pompe de diamètre  $100\ \mu\text{m}$ , présente une rupture de pente aux alentours de  $40\ \text{kHz}$ . Ceci s'explique facilement si l'on étudie la déflexion dans les trois milieux, comme présenté figure 1.13.

On voit sur ce graphe que pour des fréquences inférieures à  $10\ \text{kHz}$ , c'est la contribution du substrat qui est prépondérante, tandis que pour des fréquences

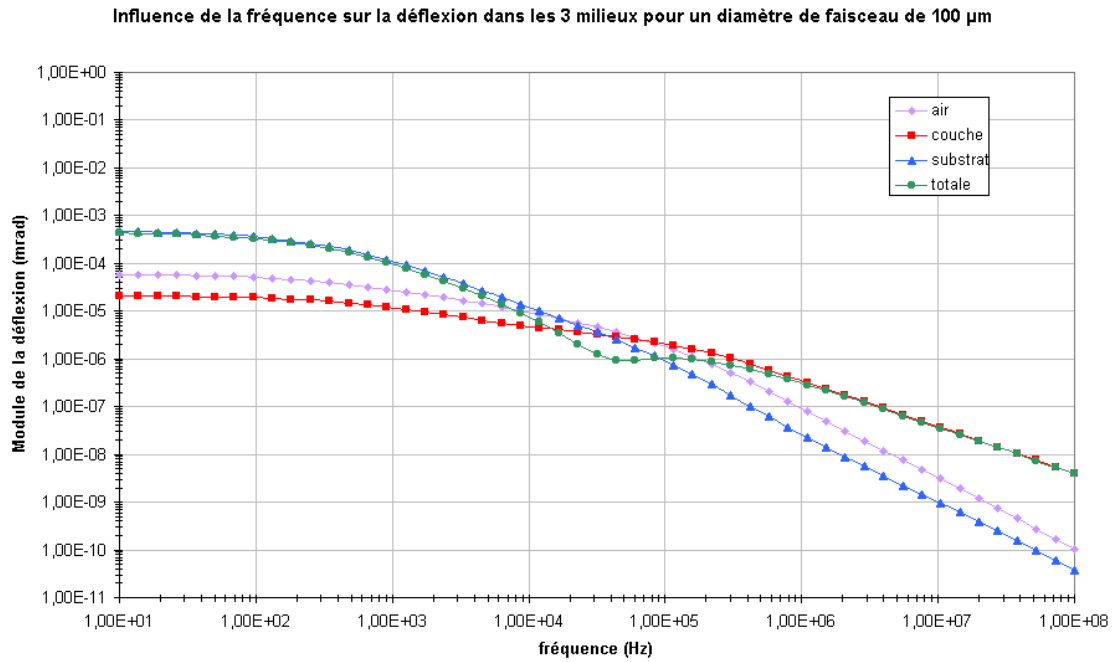


FIG. 1.13 – Evolution du maximum de la déflexion totale et dans les trois milieux en fonction de la fréquence pour un diamètre de faisceau pompe égal à 100  $\mu\text{m}$

supérieures à 100 kHz, c'est la contribution de la couche mince qui prédomine, comme dans le cas d'un faisceau pompe de diamètre 1  $\mu\text{m}$ . La pente de la déflexion en fonction de la fréquence dans le substrat étant différente de celle dans la couche mince, on observe une rupture de pente lorsque ces deux déflexions deviennent égales, pour une fréquence environ égale à 40 kHz.

On observe par ailleurs sur la figure 1.12 que les courbes pour les deux diamètres de faisceau pompe sont parfaitement superposables pour les fréquences supérieures à 100 kHz. En effet, dans le cas d'un faisceau pompe de diamètre 100  $\mu\text{m}$ , la déflexion dans la couche est prédominante pour ces fréquences et dans le cas d'un faisceau pompe de diamètre 1  $\mu\text{m}$ , la déflexion dans la couche est toujours prédominante.

Dans la configuration photothermique mettant en jeu des diamètres de faisceau larges, l'étude des propriétés thermiques des couches minces ne peut se faire qu'à haute fréquence, c'est à dire avec un signal très faible puisque dans cette configuration la déflexion décroît avec la fréquence.

Par contre avec des diamètres de faisceau très focalisés, il n'est plus nécessaire d'augmenter la fréquence pour avoir accès aux propriétés thermiques de la couche puisque la contribution de celle-ci est toujours prédominante. Cependant,

il peut être utile d'augmenter la fréquence pour diminuer le bruit expérimental et améliorer le rapport signal sur bruit. Ceci ne pose aucun problème puisque dans cette configuration la déflexion ne décroît pas lorsque la fréquence augmente jusqu'à des fréquences élevées.

## 1.6 Conclusion

Nous avons présenté une étude bibliographique décrivant les principales méthodes photothermiques employées dans notre domaine d'application. Nous avons ensuite montré qu'il était possible d'obtenir une résolution spatiale latérale de l'ordre de 100 nm en focalisant fortement le faisceau pompe (diamètre à  $1/e^2$  de l'ordre de  $1\ \mu\text{m}$ ), et ainsi de détecter des défauts isolés dont le diamètre est de l'ordre de quelques nanomètres à une centaine de nanomètres si leur absorption est suffisante (inclusions métalliques par exemple). La réalisation de cette condition impose d'obtenir une détectivité très élevée pour ce dispositif. Enfin, nous avons déterminé la configuration expérimentale optimale réunissant toutes les conditions pour réaliser un dispositif d'imagerie haute résolution des défauts locaux absorbants.

Finalement, le dispositif que nous nous proposons de réaliser est basé sur la déflexion photothermique en configuration colinéaire. Le faisceau pompe devra être fortement focalisé, de manière à obtenir un diamètre de l'ordre de  $1\ \mu\text{m}$  à la surface de l'échantillon et ainsi rendre possible une résolution sub-micronique. Le faisceau sonde devra également être focalisé, de manière à ce que son diamètre soit du même ordre de grandeur que celui du faisceau pompe et ainsi conserver une haute sensibilité. Par ailleurs, les déplacements relatifs de l'échantillon par rapport aux faisceaux devront avoir une précision d'au moins  $0,1\ \mu\text{m}$  pour permettre un pas d'échantillonnage des cartographies suffisamment petit. Le système de déplacement des lasers devra également permettre leur positionnement avec une précision d'au moins  $0,1\ \mu\text{m}$  de manière à obtenir un signal maximal.

Nous avons également mis en évidence des phénomènes associés à la forte focalisation du faisceau pompe. Par exemple, le dispositif d'imagerie haute résolution que nous nous proposons de réaliser ne permettra pas de discriminer l'influence de l'absorption et des propriétés thermiques et thermo-optiques sur le signal obtenu. Par ailleurs, la fréquence de modulation du faisceau pompe n'a pas d'influence sur le signal photothermique jusqu'à des fréquences élevées.

Pour mieux comprendre le rôle de la longueur d'onde du laser pompe sur l'absorption des défauts, une étude des propriétés spectrales des défauts absorbants et diffusants est menée au chapitre suivant.





## Chapitre 2

# Etude multi longueurs d'onde de défauts absorbants et diffusants

### 2.1 Résumé

L'endommagement laser dans les substrats nus et les couches minces est depuis longtemps connu comme un phénomène localisé associé à la présence de défauts de taille sub-micronique. L'étude localisée de l'absorption et de la diffusion optiques nous permet de discriminer les défauts absorbants des défauts non absorbants et fournit des informations spécifiques sur l'origine de ces défauts. Les propriétés spectrales de ces défauts sont étudiées pour des matériaux en couches minces et un substrat nu : l'absorption et la diffusion des défauts sont mesurées à différentes longueurs d'ondes dans les gammes de l'Ultra-Violet, du visible et de l'Infrarouge. Nous montrons ainsi que les défauts absorbants sont fortement dépendants de la longueur d'onde, contrairement aux défauts diffusants.

## 2.2 Introduction

Les défauts à l'origine de l'endommagement laser peuvent être des imperfections de la surface, telles que rayures, fissures, marches, résidus de polissage ou de nettoyage et plus généralement impuretés ou contaminants, ou bien des inhomogénéités de volume [1–7]. Tous ces défauts peuvent être responsables de variations locales des propriétés optiques, thermiques ou thermo-optiques. Suivant leur nature, ils peuvent être seulement absorbants, seulement diffusants ou à la fois absorbants et diffusants. Lors d'une irradiation, les défauts absorbants peuvent induire des effets thermiques tandis que les défauts non-absorbants peuvent provoquer une amplification du champ ou une réduction de la conduction thermique. Dans les deux cas, un endommagement peut être provoqué.

Comme nous venons de le voir, la technique de déflexion photothermique est basée sur la mesure de la déflexion d'un faisceau sonde induite par l'absorption optique. Cette technique est très utilisée pour déterminer avec une haute sensibilité les pertes par absorption dans les composants optiques. Elle permet également de réaliser des cartographies de l'absorption des composants et donc de détecter et localiser les défauts absorbants ainsi que les inhomogénéités thermiques.

Pour déterminer si les défauts absorbants observés sont également diffusants ou si d'autres défauts seulement diffusants sont présents, il est apparu utile d'associer au montage de mesure de la déflexion photothermique un système de mesure de la diffusion. Nous pouvons donc réaliser des cartographies simultanées d'absorption et de diffusion, avec exactement les mêmes conditions expérimentales [20, 22]. Il nous est alors possible de discriminer les défauts absorbants des défauts diffusants et d'en déduire des informations spécifiques sur l'origine des défauts qui jouent un rôle déterminant dans l'endommagement laser.

Les propriétés spectrales des matériaux apportent également des informations capitales sur leur composition et leur structure. Les propriétés spectrales de l'absorption dans les verres à base d'oxydes sont connues depuis une cinquantaine d'années et ont été décrites dans plusieurs articles et livres [87, 88]. Les principaux composants absorbant dans les régions spectrales Infra-Rouge, visible et Ultra-Violet sont le fer et l'eau. Cependant, la détermination des concentrations absolues d'ions ferriques, ferreux et hydroxyles et la distinction entre leur absorption et l'absorption intrinsèque n'est pas résolue à ce jour. Ceci est dû principalement au fort recouvrement des spectres d'absorption des différentes espèces.

Les spectres d'absorption des matériaux en couches minces ont également été largement étudiés mais la précision des mesures d'absorption par spectrophotométrie est insuffisante en particulier pour les longueurs d'onde du domaine du visible ou proche du visible pour lesquelles le niveau d'absorption est faible.

Nous nous intéressons ici à l'étude de l'absorption et de la diffusion des défauts dans les verres et les couches minces, pour plusieurs longueurs d'onde, dans les

gammes de l'Ultra-Violet, du visible et de l'Infra-Rouge [89]. Nous présentons tout d'abord le dispositif expérimental utilisé pour cartographier simultanément l'absorption et la diffusion. Les principaux avantages de ce dispositif sont une haute sensibilité et un positionnement précis de l'échantillon, qui permet de comparer pixel à pixel les cartographies à différentes longueurs d'onde. Nous définissons dans le paragraphe 2.4 l'outil de comparaison utilisé pour cette étude. Enfin, les résultats obtenus sur divers substrats nus et couches minces sont présentés et discutés dans le paragraphe 2.5.

## 2.3 Dispositif expérimental

Le banc de mesure d'absorption par déflexion photothermique utilisé pour ces mesures existe au laboratoire depuis 1990 et a subi depuis plusieurs améliorations avant d'atteindre sa configuration actuelle [31, 90, 91]. Par la suite, nous l'appellerons dispositif de photothermie "classique".

### 2.3.1 Le montage

La mesure de l'absorption est basée sur la technique de la déflexion photothermique. Le dispositif est entièrement automatisé et permet de réaliser simultanément des cartographies d'absorption et de diffusion partielle de l'échantillon. Celui-ci est fixé sur une platine de rotation, ce qui permet de faire varier l'angle d'incidence du faisceau pompe sur l'échantillon. Des mesures avec un angle d'incidence variant de  $0^\circ$  à  $80^\circ$  sont possibles. Les dimensions maximales des cartographies sont 2 mm x 2 mm, avec des diamètres à  $1/e^2$  du faisceau pompe que l'on peut choisir entre 3  $\mu\text{m}$  et 200  $\mu\text{m}$ . La position relative des faisceaux pompe et sonde sur la surface de l'échantillon est ajustée de manière à maximiser le signal photothermique. le faisceau pompe est modulé en intensité à basse fréquence ( $\sim 30$  Hz). Le choix de la fréquence est fait de manière à maximiser le rapport signal sur bruit. Le schéma du montage est représenté sur la figure 2.1.

Ce montage présente l'intérêt de pouvoir faire tourner le laser sonde et le détecteur à quadrants autour de l'échantillon. Il est donc possible de changer aisément la configuration de mesure. On peut ainsi effectuer les mesures en configuration quasi-colinéaire en transmission, avec le détecteur placé derrière l'échantillon sur le faisceau transmis, ou en réflexion avec le détecteur placé face à l'échantillon sur le faisceau sonde réfléchi. Il est également possible d'effectuer des mesures en configuration transverse, avec le faisceau sonde parallèle à la surface de l'échantillon. Ces trois configurations et leurs spécificités sont définies au paragraphe 1.3.1. La configuration utilisée pour les mesures présentées dans ce chapitre est celle en transmission. En effet, dans cette configuration, une procédure de positionnement de l'échantillon précise à mieux que 2  $\mu\text{m}$  a été mise en oeuvre.

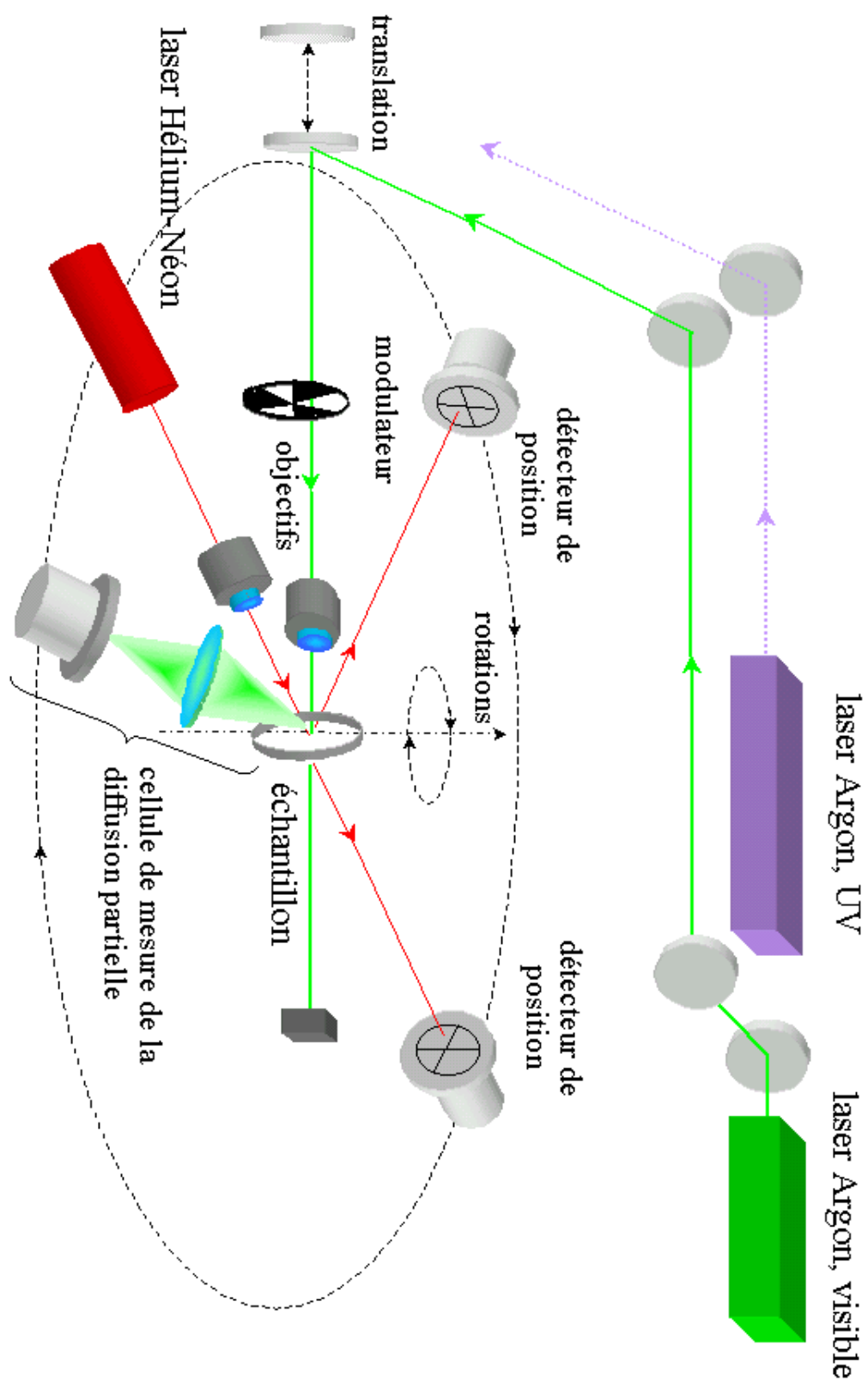


FIG. 2.1 – Schéma du dispositif expérimental

### 2.3.2 Le dispositif de positionnement de l'échantillon

Si l'on veut pouvoir comparer des cartographies réalisées à différentes longueurs d'onde, ou encore avant et après avoir fait subir un traitement à l'échantillon (vieillessement, nettoyage), un soin tout particulier doit être apporté au positionnement de l'échantillon. Pour cela, la position du faisceau sonde sur la surface de l'échantillon est définie comme position de référence.

Pour repositionner l'échantillon, on munit le porte échantillon et les échantillons d'un méplat qui constitue la face latérale de référence. Le faisceau sonde est alors positionné au centre de l'échantillon grâce à un centreur, pièce métallique de même forme et mêmes dimensions que l'échantillon, percée d'un trou au centre. Le faisceau sonde étant centré sur l'échantillon, il suffit ensuite de déplacer celui-ci grâce aux moteurs pas-à-pas pour placer le faisceau sonde au point de coordonnées voulues comme le montre la figure 2.2. Expérimentalement, on est alors capable de retrouver la position de tous les points de l'échantillon à  $2\text{ }\mu\text{m}$  près.

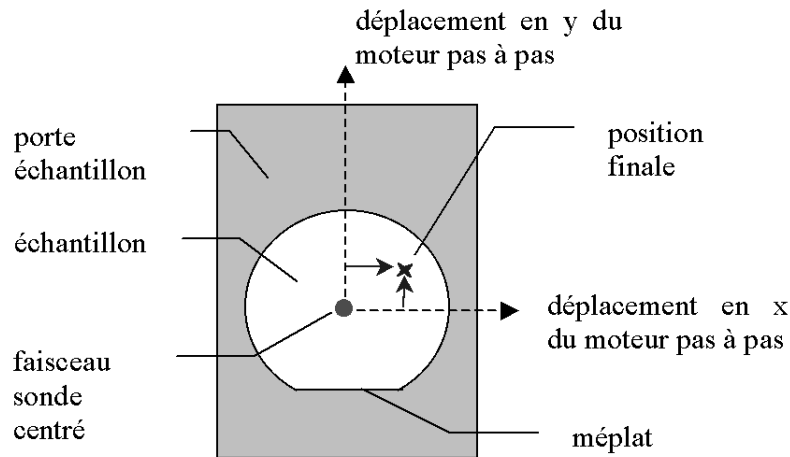


FIG. 2.2 – Procédure de repositionnement

### 2.3.3 Les lasers

#### Les lasers pompes

Deux lasers pompes sont disponibles sur le montage : un laser argon émettant dans le visible et un laser argon émettant dans l'Ultra-Violet. Dans les deux cas, les lasers fonctionnent en continu, le faisceau émis est TEM00 (profil énergétique gaussien) et la polarisation est verticale (polarisation s pour l'échantillon). Les spécifications de ces deux lasers sont données dans les tableaux 2.1 et 2.2.

longueurs d'onde utilisables	454-514 nm
mode d'émission	TEM00
puissance nominale toutes raies	5 W
diamètre du waist de sortie à $1/e^2$ (pour 514 nm)	1,25 mm
demi-angle de divergence du faisceau (pour 514 nm)	0,69 mrad
stabilité en mode courant	3 %
stabilité en mode puissance	0,5%
bruit rms maximal(bande 1 kHz - 10 MHz)en mode courant	2 %
bruit rms maximal(bande 1 kHz - 10 MHz)en mode puissance	1 %
polarisation	verticale

TAB. 2.1 – Spécifications du laser pompe Argon fonctionnant dans le visible

longueurs d'onde utilisables	351-363 nm
mode d'émission	TEM00
puissance nominale toutes raies	80 mW
diamètre du waist de sortie à $1/e^2$ (pour 363 nm)	1,5 mm
demi-angle de divergence du faisceau (pour 363 nm)	0,5 mrad
stabilité en mode courant	3 %
stabilité en mode puissance	0,5%
bruit rms maximal(bande 1 kHz - 10 MHz)en mode courant	0,2 %
bruit rms maximal(bande 1 kHz - 10 MHz)en mode puissance	0,2 %
polarisation	verticale

TAB. 2.2 – Spécifications du laser pompe Argon fonctionnant dans l'UV, fourni par le CEA/CESTA

### Le laser sonde

Le faisceau sonde est un Hélium-Néon dont les propriétés sont résumées dans le tableau 2.3.

### Focalisation des lasers

Les difficultés liées à la définition et à la mesure de la résolution seront largement développées dans le paragraphe 3.3.4. Précisons seulement ici que la résolution du dispositif est liée à la taille (diamètre à  $1/e^2$ ) du faisceau pompe sur l'échantillon. On peut donc changer la résolution en changeant l'optique de focalisation du faisceau pompe. Sur ce dispositif, le diamètre à  $1/e^2$  du faisceau peut varier de 200  $\mu\text{m}$  à 3  $\mu\text{m}$  suivant la focale, comme résumé sur le tableau 2.4.

Sur ce dispositif expérimental, la focalisation du faisceau sonde ne change pas : le diamètre du faisceau sonde est 28  $\mu\text{m}$  quel que soit le diamètre du fais-

longueur d'onde	632,8 nm
mode d'émission	TEM00
puissance minimale	0,8 mW
diamètre du waist de sortie (à $1/e^2$ )	0,48 mm
demi-angle de divergence du faisceau	1,7 mrad
dérive maximale de la puissance moyenne sur 8 heures	5 %
bruit rms maximal(dans la bande 1 kHz - 10 MHz)	0,1 %
stabilité angulaire du faisceau à 25°C à froid	<0,1 mrad
stabilité angulaire du faisceau à 25°C à chaud	<0,01 mrad
polarisation	non polarisé

TAB. 2.3 – Spécifications du laser sonde

diamètre du waist image	optiques de focalisation choisies
100 $\mu\text{m}$	lentille plan/convexe Melles Griot
64 $\mu\text{m}$	lentille plan/convexe Melles Griot
25 $\mu\text{m}$	lentille plan/convexe Melles Griot
10 $\mu\text{m}$	doublet Melles Griot
3 $\mu\text{m}$	objectif de microscope Newport

TAB. 2.4 – Optiques de focalisation

ceau pompe. La focalisation du faisceau pompe n'a pas d'influence directe sur la résolution du dispositif. Par contre, elle limite sa sensibilité dans le cas où le diamètre du faisceau pompe est inférieur au diamètre du faisceau sonde.

### 2.3.4 L'étalonnage

Le dispositif de déflexion photothermique fournit uniquement la valeur du signal photothermique SP (défini au paragraphe 3.3.2). Nous avons vu que ce signal était proportionnel à l'absorption A recherchée, par l'intermédiaire de la déflexion angulaire  $\theta$ . Pour avoir accès à la valeur de l'absorption, il faut déterminer ce rapport de proportionnalité, que l'on appellera coefficient d'étalonnage [22].

Nous utilisons pour cela des échantillons étalons, d'absorption suffisamment élevée pour être correctement mesurée par spectro-photométrie. L'étalonnage consiste à comparer la valeur de l'absorption obtenue avec celle du signal photothermique.

On détermine l'absorption d'un échantillon grâce à l'opération suivante :

$$\frac{A}{SP} = \frac{A_{et}}{SP_{et}} \quad (2.1)$$



$$\Rightarrow \boxed{A = ET.SP} \text{ avec } \boxed{ET = \frac{A_{et}}{SP_{et}}} \quad (2.2)$$

avec :

A : absorption de l'échantillon étudié (à déterminer)

SP : signal photothermique de l'échantillon

$A_{et}$  : absorption de l'étalon (déterminée par spectrophotométrie)

$SP_{et}$  : signal photothermique de l'étalon

ET : coefficient d'étalonnage

Les hypothèses faites pour établir cette relation et les approximations qui en découlent sont détaillées chapitre 3.3.3. Nous y voyons également comment minimiser les incertitudes sur la valeur absolue de l'absorption.

### 2.3.5 Mesure de la diffusion partielle

Le montage est de plus équipé d'une cellule de mesure de la diffusion partielle (voir figure 2.1). Cette cellule est constituée d'une lentille de grande ouverture et d'une photodiode au silicium collectant la lumière du faisceau pompe diffusée (en dehors de la direction de réflexion spéculaire) dans un cône d'angle  $30^\circ$ . Un diaphragme placé derrière la lentille élimine la lumière diffusée par la face arrière de l'échantillon et par les autres impacts résultants des réflexions multiples du faisceau pompe sur les faces de l'échantillon.

La photodiode au silicium reçoit le flux diffusé et délivre une tension  $V_{diff}$  proportionnelle à ce flux. La mesure étant réalisée dans une angle solide particulier, nous obtenons ainsi une mesure de diffusion partielle. Une mesure du flux du faisceau pompe incident sur l'échantillon à l'aide de la même photodiode permet de connaître la tension  $V_{inc}$  proportionnelle à ce flux. Le facteur de diffusion partielle  $D$  est alors défini par le rapport des flux  $D = V_{diff}/V_{inc}$ , difficilement comparable à la diffusion totale dans tout l'espace (total scattering ou TS) [88, 92–94]. Ceci est peu gênant dans la mesure où l'on s'intéresse tout particulièrement à la présence de défauts diffusants et où l'on réalise une cartographie.

Ce dispositif permet donc de réaliser des cartographies simultanées d'absorption et de diffusion partielle des échantillons, à différentes longueurs d'onde. Il est possible d'étudier les corrélations existant d'une part entre 2 types de cartographies (absorption et diffusion), d'autre part entre 2 longueurs d'onde différentes pour un même type de cartographies. Nous pouvons alors suivre défaut par défaut l'évolution locale de l'absorption et de la diffusion avec la longueur d'onde, tout cela avec une résolution spatiale pouvant atteindre  $3 \mu\text{m}$  et une précision de repositionnement meilleure que  $2 \mu\text{m}$ .

## 2.4 Définition d'un outil de comparaison

Si deux cartographies présentent peu de défauts, de contours bien définis et d'amplitude (en absorption ou diffusion) élevée par rapport au fond, la comparaison entre elles est aisée. Par contre, il est difficile de définir, et encore plus de chiffrer la ressemblance entre deux cartographies si les défauts sont nombreux, de contours mal définis, ou d'amplitude faible par rapport au fond. Ce problème est particulièrement critique pour nous car ce genre de défauts est fréquent sur les échantillons de faibles valeurs d'absorption et de diffusion.

Pour comparer précisément et objectivement 2 cartographies, il est alors nécessaire de définir un outil de comparaison performant, permettant de caractériser et de chiffrer la ressemblance entre 2 cartographies ainsi qu'un éventuel décalage de positionnement. Nous avons pour cela choisi un outil de comparaison basé sur l'intercorrélation des cartographies étudiées.

### 2.4.1 Coefficient de corrélation

Une approche simple et couramment utilisée consiste à calculer la valeur du maximum de la fonction d'intercorrélation de deux matrices. En ce qui nous concerne, les cartographies sont des matrices de taille  $n \times p$  correspondant au nombre de points de mesure et associées au profil d'absorption  $A(x,y)$  ou de diffusion partielle  $D(x,y)$ . Elles seront notées respectivement :

$$A = (A_{i,j})_{i=1,n;j=1,p} \text{ et } D = (D_{i,j})_{i=1,n;j=1,p}$$

La fonction d'intercorrélation de A et D est alors définie par :

$$Cor(A, D)_{i,j} = \sum_{k=1}^n \sum_{l=1}^p a_{k,l} d_{k-i,l-j} \quad (2.3)$$

Où a et d sont les matrices centrées, normées associées à A et D par les relations suivantes :

$$a_{i,j} = \frac{A_{i,j} - A_{moy}}{\sqrt{\sum_k \sum_l (A_{k,l} - A_{moy})^2}} \text{ et } A_{moy} = \frac{\sum_k \sum_l A_{k,l}}{np} \quad (2.4)$$

On peut alors définir le maximum de la fonction d'intercorrélation, que l'on nommera par la suite coefficient de corrélation :

$$COR(A, D)_{i_0,j_0} = Max(Cor(A, D)_{i,j}) \quad (2.5)$$

La valeur du coefficient de corrélation permet alors de chiffrer le degré de ressemblance entre les deux cartographies. Les coordonnées  $(i_0, j_0)$  où le maximum se produit correspondent au décalage éventuel entre les 2 cartographies. Ce décalage est toujours nul dans le cas de corrélations entre cartographies d'absorption et

de diffusion à la même longueur d'onde, puisque les mesures sont simultanées. De plus il est généralement faible dans le cas de cartographies à des longueurs d'onde différentes car le dispositif de positionnement est relativement précis.

Un des inconvénients de cette méthode est qu'elle ne prend en compte qu'une seule valeur de la fonction d'intercorrélation (le maximum). Un certain nombre d'informations contenues dans cette fonction sont donc perdues. Cette perte d'informations peut avoir une influence sur l'utilisation du coefficient de corrélation dans notre application. En particulier, COR est peu sélectif et peut prendre des valeurs relativement élevées même pour des fichiers non corrélés. L'exemple présenté sur la figure 2.3 montre que la corrélation de 2 matrices 20 x 20 aléatoires centrées normées générées numériquement est loin d'être nulle.

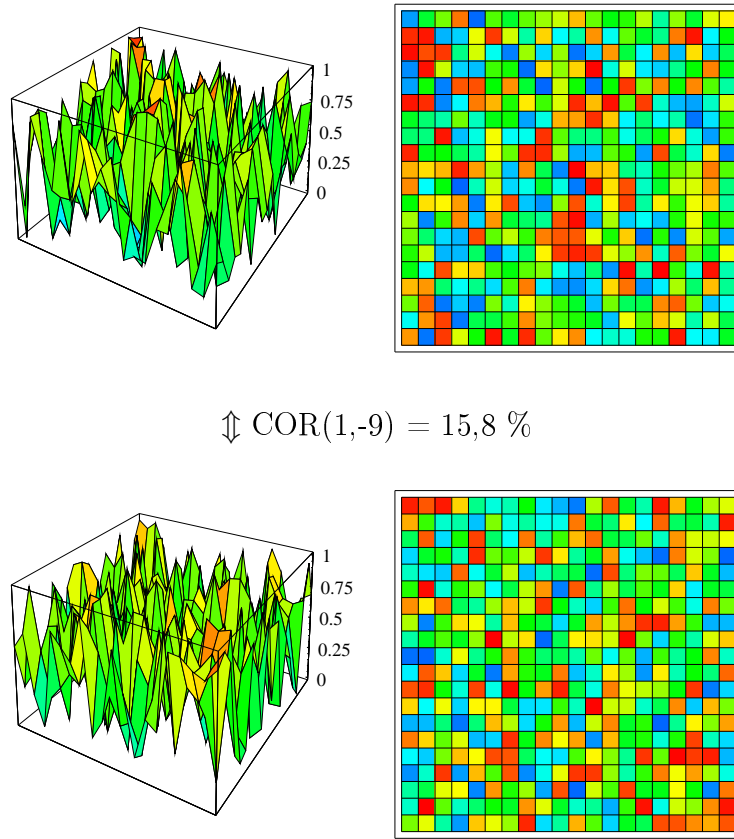


FIG. 2.3 – Exemple de bruit simulé

Notons que la valeur du coefficient de corrélation de 2 cartographies de bruit se rapproche de zéro quand le nombre de points des cartographies augmente. Nous l'avons chiffrée dans nos conditions expérimentales (nombre de points supérieur à 20 x 20). Dans ce cas la valeur du coefficient d'intercorrélation est obtenue en (1,-9) et vaut 15,8 %. Nous estimons cette valeur trop élevée comparée à la valeur nulle attendue. Nous cherchons donc à améliorer l'outil de comparaison qu'est le

coefficient de corrélation, en prenant en compte tous les points de la fonction d'intercorrélation.

### 2.4.2 "Pic de Corrélation en Energie"

Nous avons donc défini un second outil de comparaison, de manière à prendre en compte non seulement le maximum de la fonction de corrélation mais également l'énergie de la fonction totale de corrélation [95]. Ce terme est appelé "Pic de Corrélation en Energie" ("Peak to Correlation Energy") et sera noté  $PCE(A,D)_{i_0,j_0}$ . Pour définir ce coefficient, une des deux cartographies doit être choisie comme cartographie de référence. En choisissant arbitrairement A comme cartographie de référence,  $PCE(A,D)_{i_0,j_0}$  est alors donné par la relation suivante :

$$PCE(A,D)_{i_0,j_0} = \frac{\text{Max}(|Cor(A,D)_{i,j}|^2)}{\text{Ener}(A,D)} / \frac{\text{Max}(|Cor(A,A)_{i,j}|^2)}{\text{Ener}(A,A)} \quad (2.6)$$

Où  $\text{Ener}(A,D)$  est l'énergie de la fonction d'intercorrélation de A et D définie par  $\text{Ener}(A,D) = \sum_i \sum_j [\sum_k \sum_l A_{k,l} D_{k-i,l-j}]^2$

Reprenons l'exemple des cartographies de bruit précédent. On obtient  $PCE = 5 \%$  (au lieu de  $COR = 15,8 \%$ ).  $PCE$  est donc nettement plus sélectif que  $COR$ , notamment vis à vis du bruit.

Nous allons à présent étudier le  $PCE$  en vue de valider cet outil de comparaison ainsi que de caractériser le dispositif expérimental (bruit expérimental, répétabilité des mesures). Nous nous intéresserons également à l'évolution du  $PCE$  avec l'apparition d'un défaut sur une des cartographies.

### 2.4.3 Validation du PCE et caractérisation du dispositif expérimental

#### Le bruit

Nous avons déjà vu l'intérêt du  $PCE$  dans le cas de bruit simulé numériquement. Cependant, ce qui va nous permettre de chiffrer la limite de corrélation de 2 cartographies est le  $PCE$  obtenu pour la corrélation de cartographies de bruit expérimental. Ces mesures de bruit sont réalisées dans les conditions suivantes : nous relevons une cartographie avec nos conditions expérimentales usuelles (échantillon dans le porte échantillon, faisceau sonde focalisé à sa surface, etc.) mais avec le faisceau pompe occulté. Cette méthode permet de prendre en compte tous les bruits qui peuvent survenir durant la mesure. Ces bruits peuvent être liés au détecteur (bruit d'obscurité), au faisceau sonde (bruit d'instabilité de pointé), mais également à l'échantillon lui même (présence de défauts ou de contaminants sur

la face arrière, déplacement d'air à la surface de l'échantillon). Les cartographies de la figure 2.4 sont des exemples de cartographies de bruit successives obtenues dans les conditions suivantes : le diamètre du faisceau pompe, égal au pas d'échantillonnage vaut  $25\ \mu\text{m}$ , et le nombre total de points est  $21 \times 21$ . Le bruit a été évalué en terme d'absorption suivant la procédure classique de l'étalonnage.

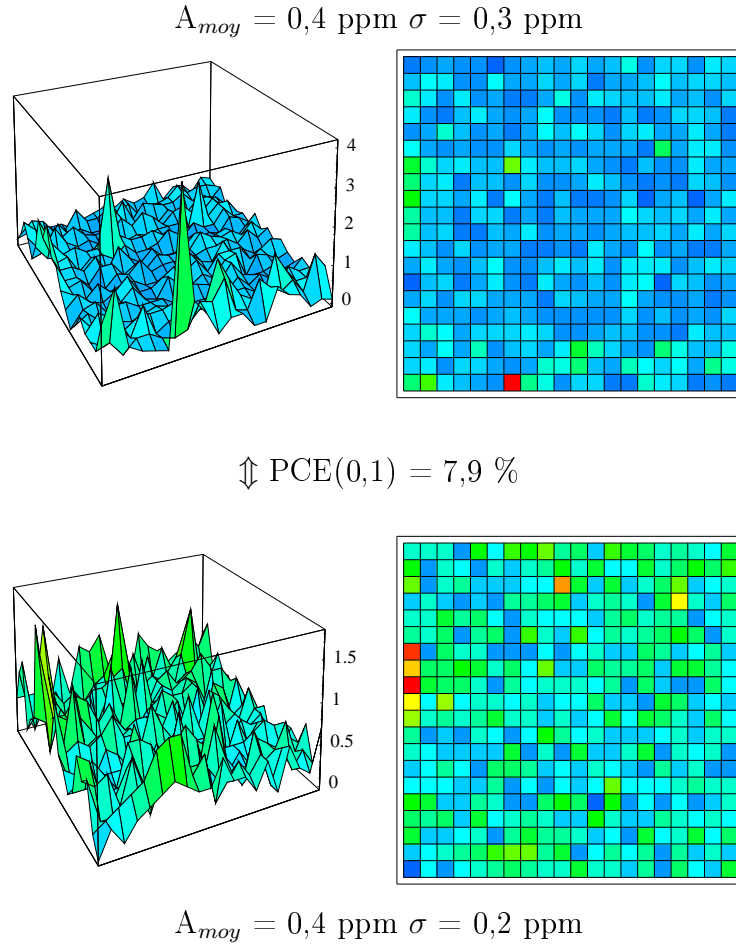


FIG. 2.4 – Exemple de bruit expérimental évalué en termes d'absorption ; conditions expérimentales : diamètre du faisceau pompe = pas d'échantillonnage =  $25\ \mu\text{m}$ , zone cartographiée =  $500\ \mu\text{m} \times 500\ \mu\text{m}$

On obtient  $\text{PCE}(0,1) = 7,9\ \%$ . La valeur de PCE est plus élevée dans le cas du bruit expérimental que dans le cas de bruit simulé. De plus sa valeur est obtenue en  $(0,1)$ , point plus proche de  $(0,0)$  que dans le cas de bruit simulé  $(1,-9)$ . Ceci tend à prouver que 2 cartographies successives de bruit expérimental sont légèrement plus corrélées que 2 cartographies de bruit simulé. Ceci est dû à l'origine même du bruit et à la façon dont il est mesuré. Les bruits tels que bruit d'obscurité, instabilité de pointé sont aléatoires. Il n'en est bien sûr pas de même des bruits liés à la présence de l'échantillon. En particulier le bruit lié à la présence de défauts

sur la face arrière est propre à l'échantillon et va être identique pour 2 mesures de bruit successives sur une même surface de l'échantillon. La valeur limite du PCE à partir de laquelle on estime qu'il n'y a pas corrélation entre 2 cartographies doit nécessairement prendre en compte la présence de l'échantillon et l'ensemble des conditions expérimentales. En toute rigueur, elle doit être calculée pour tous les échantillons étudiés. Pour ne pas alourdir les séries de mesures, nous définissons cette limite avec une marge suffisante à  $PCE_{lim} = 10 \%$ .

### La répétabilité

Le PCE permet également de quantifier la répétabilité des mesures. Nous présentons sur la figure 2.5 l'exemple d'un substrat nu de silice dont l'absorption a été mesurée 2 fois successivement dans les mêmes conditions expérimentales et sans enlever l'échantillon de son support. Les mesures ont été réalisées à 514 nm, avec 21 x 21 points, et un diamètre de faisceau pompe et un pas de 25  $\mu\text{m}$ . Une zone 500  $\mu\text{m}$  x 500  $\mu\text{m}$  est donc étudiée.

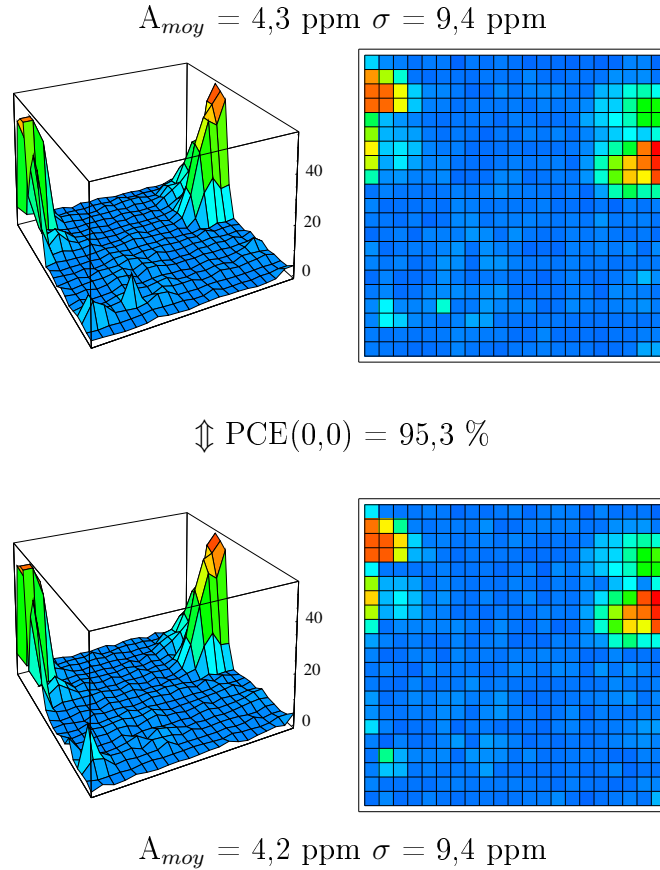


FIG. 2.5 – Exemple de répétabilité en absorption ; conditions expérimentales : diamètre du faisceau pompe = pas d'échantillonnage = 25  $\mu\text{m}$ , zone cartographiée = 500  $\mu\text{m}$  x 500  $\mu\text{m}$

Nous observons ici une très bonne répétabilité : PCE est proche de 100 % et de plus il se produit en (0,0), ce qui prouve qu'il n'y a aucun décalage entre les 2 cartographies [31].

Notons que dans ce cas il était aisé de prévoir que la corrélation serait élevée : les deux cartographies présentent des défauts peu nombreux, de contours bien définis et d'amplitudes élevées par rapport au fond. Par contre il est beaucoup moins évident d'affirmer sans calculer le PCE que les cartographies se ressemblent dans la zone centrale de faible absorption. Le PCE est très utile ici car il permet non seulement de chiffrer la ressemblance des 2 cartographies (donc la répétabilité de la mesure) mais également de vérifier que la zone de faible absorption n'est pas noyée dans le bruit. On obtient pour cette zone  $PCE(0,0) = 39,7 \%$ . Nous pouvons donc affirmer que la mesure est bien répétable dans les zones faiblement absorbantes en nous basant sur 2 critères : nous sommes loin de  $PCE_{lim} = 10 \%$  et le maximum de corrélation se produit bien en (0,0).

### Apparition de défauts

Dans la suite du chapitre nous utilisons le PCE pour caractériser l'évolution des défauts (absorbants et diffusants) en fonction de la longueur d'onde pompe. Nous avons donc, dans un premier temps, étudié le comportement du PCE avec l'apparition de défauts. L'exemple suivant présente les résultats en absorption et en diffusion de 2 mesures successives d'un substrat nu de silice. De même que précédemment, on étudie à 514 nm une zone  $500 \mu\text{m} \times 500 \mu\text{m}$  (21 x 21 points, diamètre de faisceau pompe et pas de  $25 \mu\text{m}$ ). Contrairement au cas précédent, nous observons l'apparition d'un défaut absorbant et diffusant sur les cartographies de la 2<sup>ème</sup> mesure, comme le montre la figure 2.6. L'origine du défaut est probablement liée à une contamination surfacique. Cet exemple est particulièrement intéressant car il nous permet d'étudier le PCE dans quasiment tous les cas de figures qui vont nous concerner dans la suite :

- 1<sup>er</sup> cas : apparition d'un défaut sur 2 cartographies non corrélées (absorption - diffusion)
- 2<sup>ème</sup> cas : apparition d'un défaut de forte amplitude sur 2 cartographies corrélées (absorption - absorption)
- 3<sup>ème</sup> cas : apparition d'un défaut de faible amplitude sur 2 cartographies corrélées (diffusion - diffusion)

Le 1<sup>er</sup> cas concerne l'évolution du PCE des cartographies d'absorption et de diffusion entre la 1<sup>ère</sup> et la 2<sup>ème</sup> mesure. Nous observons que les cartographies sont décorréliées ( $PCE(0,0) = 1,7 \%$ ) pour la 1<sup>ère</sup> mesure, tandis qu'elles deviennent corrélées ( $PCE(0,0) = 12,5 \%$ ) pour la seconde mesure. La répétabilité des mesures, que nous avons chiffrée dans le paragraphe précédent, étant très bonne, nous pouvons affirmer que c'est l'apparition du défaut absorbant et diffusant qui est

## 2.4. DÉFINITION D'UN OUTIL DE COMPARAISON

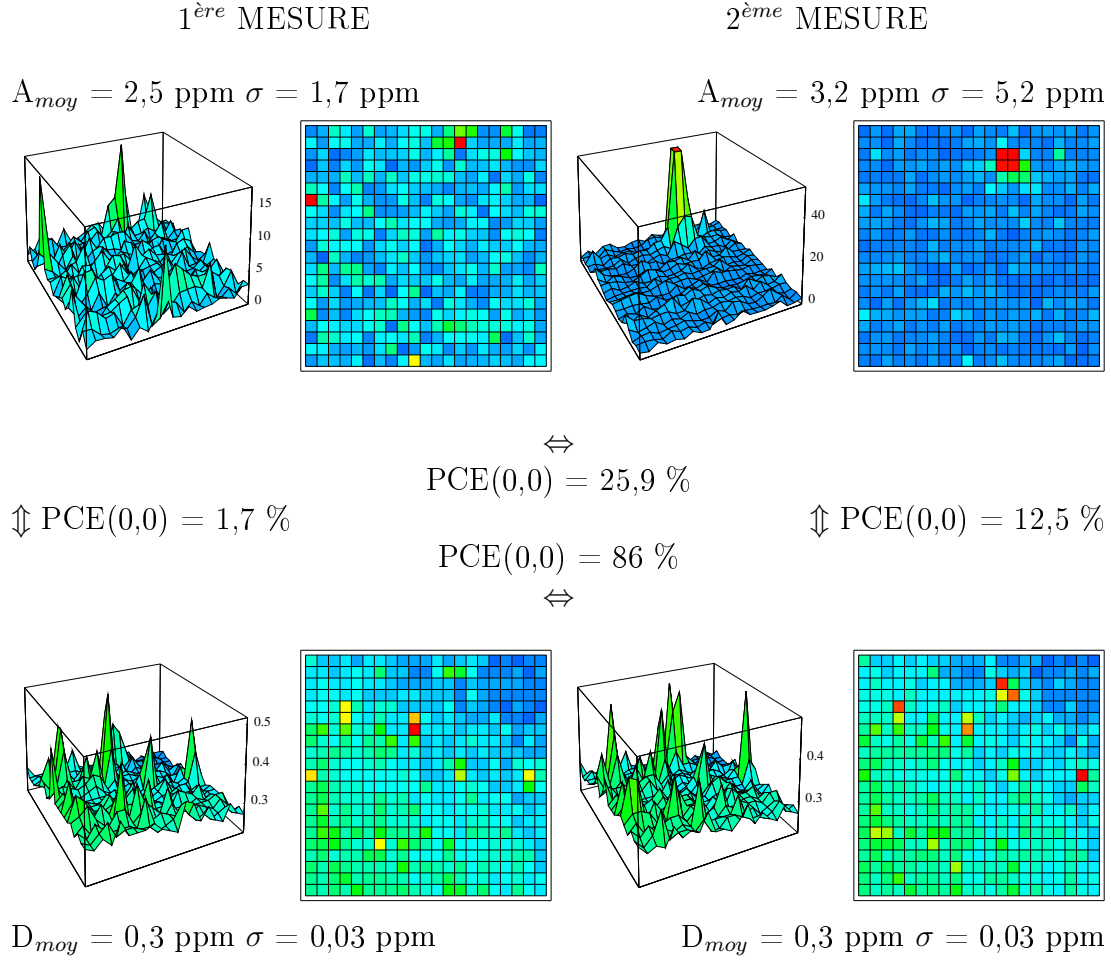


FIG. 2.6 – Apparition d'un défaut absorbant et diffusant entre la 1<sup>ère</sup> et la 2<sup>ème</sup> mesure ; conditions expérimentales : diamètre du faisceau pompe = pas d'échantillonnage =  $25 \mu\text{m}$ , zone cartographiée =  $500 \mu\text{m} \times 500 \mu\text{m}$

à l'origine de l'augmentation de la corrélation. En règle générale, pour des cartographies non corrélées et présentant des défauts de contours mal définis, ou d'amplitudes faibles par rapport au fond (cas des cartographies de la 1<sup>ère</sup> mesure), l'apparition d'un défaut au même endroit sur les cartographies provoque une forte élévation de la corrélation.

Le 2<sup>ème</sup> cas concerne le PCE des cartographies d'absorption entre la 1<sup>ère</sup> et la 2<sup>ème</sup> mesure, pour laquelle apparaît un défaut d'amplitude élevée par rapport à la valeur moyenne de l'absorption. Les calculs faits sur la répétabilité nous permettent d'affirmer qu'en l'absence de défauts le PCE serait proche de 1 et obtenu en (0,0). Or, ici, nous obtenons  $\text{PCE}(0,2) = 25,9 \%$ . La faible valeur de PCE et le fait que le maximum se produise en (0,2) sont donc liés à la présence du défaut : le PCE se produit alors lorsque le défaut apparu sur la 2<sup>ème</sup> cartogra-



graphie coïncide avec le défaut d'amplitude maximale de la 1<sup>ère</sup> cartographie, d'où le décalage vertical de 2 pixels. En règle générale, pour 2 cartographies corrélées l'apparition sur l'une d'entre elles d'un défaut d'amplitude élevée par rapport à la valeur moyenne provoque une diminution considérable de la corrélation.

Enfin, le 3<sup>ème</sup> cas concerne le PCE des cartographies de diffusion entre la 1<sup>ère</sup> et la 2<sup>ème</sup> mesure, pour laquelle apparaît un défaut d'amplitude faible par rapport à la valeur moyenne de la diffusion. Contrairement au cas précédent, les cartographies restent corrélées, même après apparition d'un défaut. Il faut noter que la cartographie de la 1<sup>ère</sup> mesure présentait déjà de nombreux défauts diffusants et que la taille et l'amplitude du défaut qui apparaît pendant la 2<sup>ème</sup> mesure sont du même ordre de grandeur que celles des défauts déjà présents. En règle générale, pour 2 cartographies corrélées, l'apparition sur l'une d'entre elles, d'un défaut de taille et d'amplitude équivalentes à celles des défauts déjà présents n'entraîne pas de diminution notable de la corrélation.

En vue de chiffrer la ressemblance des cartographies d'absorption et de diffusion et de suivre l'apparition de défauts absorbants et/ou diffusants, nous avons défini un outil de comparaison basé sur la fonction d'intercorrélation. Nous nous sommes particulièrement attachés à ce que cet outil soit sélectif et discriminant par rapport au bruit. Nous avons ainsi défini une limite ( $PCE_{lim} = 10\%$ ) pour des cartographies de 400 points en dessous de laquelle nous considérons que les cartographies sont entièrement décorrélées. Cet outil de comparaison nous a également permis de caractériser le dispositif expérimental en termes de bruit et de répétabilité. Nous avons également étudié le comportement du PCE avec l'apparition d'un défaut dans le but de caractériser l'apparition des défauts absorbants et/ou diffusants.

## 2.5 Résultats expérimentaux

Une précédente étude par cartographies d'absorption et de diffusion pour des longueurs d'onde du visible (514 nm) et de l'Infra-Rouge (1,06  $\mu\text{m}$ ) a été menée sur des substrats nus d'Herasil [31]. Il a été montré que la corrélation entre les cartographies d'absorption à ces deux longueurs d'onde était négligeable, tandis qu'elle était plus élevée pour les cartographies de diffusion.

Dans ce paragraphe, nous nous attachons principalement à l'étude des défauts absorbants et diffusants d'un substrat nu et de différentes couches minces pour les longueurs d'onde de l'Ultra-Violet et du visible. Un exemple de mesure à trois longueurs d'onde permet d'étendre les résultats aux longueurs d'ondes de l'Infra-Rouge. En ce qui concerne les longueurs d'onde de l'Ultra-Violet, nous avons tout d'abord comparé les mesures effectuées à 351 nm et 363 nm. Les corrélations entre les cartographies obtenues à ces deux longueurs sont très élevées : PCE  $\sim 95\%$  pour l'absorption et PCE  $\sim 80\%$  pour la diffusion. Nous avons donc considéré que l'influence de la longueur d'onde était négligeable dans ce cas et avons choisi la longueur d'onde permettant d'obtenir une sensibilité maximale, c'est à dire 363 nm dans notre configuration expérimentale.

Pour cette étude, les faisceaux pompe et sonde sont focalisés sur l'échantillon avec des diamètres de faisceau à  $1/e^2$  respectivement de 25  $\mu\text{m}$  et 28  $\mu\text{m}$ . Nous avons choisi la configuration quasi-colinéaire en transmission : le faisceau sonde traverse l'échantillon et est dévié par le gradient d'indice de réfraction modulé dans les trois milieux : air, couche, substrat. Comme il a été expliqué, le dispositif expérimental permet de réaliser des mesures d'absorption et de diffusion partielle simultanément et donc avec exactement les mêmes conditions expérimentales. Nous obtenons donc des cartographies d'absorption et de diffusion partielle appariées pour chaque longueur d'onde étudiée. Pour chaque composant (substrat nu et couches minces), nous réalisons des cartographies de 21 x 21 points avec un pas égal au diamètre à  $1/e^2$  du faisceau pompe (25  $\mu\text{m}$ ). La surface de la zone cartographiée est donc 500  $\mu\text{m}$  x 500  $\mu\text{m}$ .

Rappelons que dans le cas des corrélations entre cartographies d'absorption et de diffusion la fonction d'intercorrélation est toujours censée être maximale en (0,0) puisque les mesures sont réalisées simultanément grâce au même faisceau pompe. Nous ne tiendrons donc pas compte des valeurs du PCE lorsque le maximum ne se produit pas en (0,0), ce qui est fréquent dans les cas de non-corrélation. Dans ces cas là, la valeur donnée sera celle calculée en (0,0).

De même, si l'on obtient pour 2 cartographies de diffusion par exemple une forte corrélation en  $(i_0, j_0)$  et que le maximum de la fonction d'intercorrélation des cartographies d'absorption associées est faible et se produit loin de  $(i_0, j_0)$ , nous ne tiendrons pas compte de cette valeur. Nous fournirons le valeur du PCE calculée en  $(i_0, j_0)$ .

### 2.5.1 Substrat nu

#### Suprasil 2

La figure 2.7 montre les résultats obtenus pour un substrat nu de silice Suprasil 2. Les défauts absorbants et diffusants que l'on peut observer sont localisés à la surface de l'échantillon. Les longueurs d'onde sont 363 nm à gauche et 514 nm à droite. Les valeurs moyennes et les écarts types de l'absorption et de la diffusion sont donnés pour chaque longueur d'onde.

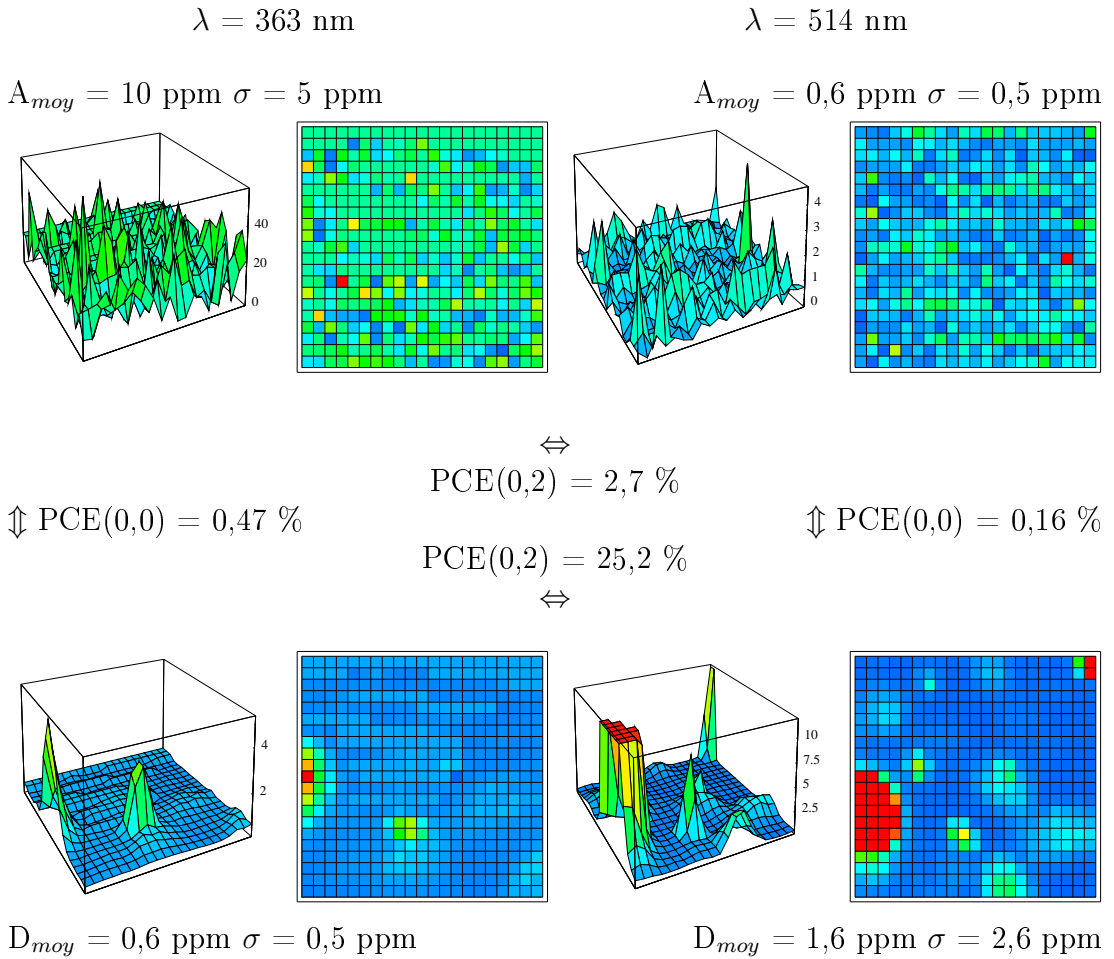


FIG. 2.7 – Absorption et diffusion à 363 nm et 514 nm d'un substrat nu de suprasil; conditions expérimentales : diamètre du faisceau pompe = pas d'échantillonnage = 25  $\mu\text{m}$ , zone cartographiée = 500  $\mu\text{m}$  x 500  $\mu\text{m}$

On observe que la valeur moyenne de la diffusion ne varie pas significativement tandis que celle de l'absorption est considérablement plus élevée à la longueur d'onde la plus faible :  $A_{\text{moy}} = 10 \text{ ppm}$  à 363 nm tandis que  $A_{\text{moy}} = 0,6 \text{ ppm}$  à 514 nm. Ceci n'est pas surprenant puisque l'on s'approche de la zone

d'absorption UV intrinsèque. Les photons de courtes longueurs d'onde sont alors assez énergétiques pour provoquer des transitions entre états localisés dans le bande de interdite [96].

Les corrélations entre cartographies d'absorption et de diffusion sont négligeables quelle que soit la longueur d'onde :  $PCE = 0,47 \%$  à 363 nm et  $PCE = 0,16 \%$  à 514 nm. Ici, la valeur du PCE est obligatoirement obtenue en (0,0) puisque les cartographies d'absorption et de diffusion sont réalisées simultanément. Aucun décalage n'est possible contrairement au cas des mesures successives.

La corrélation entre les cartographies de diffusion aux 2 longueurs d'onde est significative : la fonction d'intercorrélation a un maximum en (0,2) et  $PCE(0,2) = 25,2 \%$ . Notons que les cartographies sont décalées de 2 pixels verticalement, puisque le maximum de corrélation se produit en (0,2) et non en (0,0).

Par ailleurs, les cartographies d'absorption, elles, ne sont pas corrélées. Le maximum de la fonction d'intercorrélation est faible et se produit loin de (0,0). Pour chiffrer cette absence de corrélation, nous avons calculé le PCE en (0,2), c'est à dire au point correspondant au maximum de corrélation des cartographies de diffusion. On obtient alors  $PCE(0,2) = 2,7 \%$ .

### 2.5.2 Couches minces

#### HfO<sub>2</sub>

Des résultats similaires sont obtenus sur des couches minces. La figure 2.8 représente les résultats obtenus pour une couche mince de HfO<sub>2</sub> déposée sur un substrat de silice Herasil 1 par évaporation classique (Electron Beam Deposition).

Les mêmes commentaires que précédemment peuvent être faits en ce qui concerne les valeurs de l'absorption et de la diffusion aux 2 longueurs d'onde : pas de variation significative de la valeur moyenne de la diffusion et forte décroissance de la valeur moyenne de l'absorption quand la longueur d'onde augmente.

Les corrélations entre cartographies d'absorption et de diffusion sont très faibles quelle que soit la longueur d'onde :  $PCE = 1,3 \%$  à 363 nm et  $PCE = 6,6 \%$  à 514 nm.

Nous observons comme précédemment une corrélation entre les cartographies de diffusion à 363 nm et 514 nm mais beaucoup plus marquée : la fonction d'intercorrélation a un maximum en (3,0) et  $PCE(3,0) = 98,2 \%$ .

Par ailleurs, la corrélation entre les cartographies d'absorption est négligeable. On calcule le PCE en (3,0) et on obtient  $PCE(3,0) = 0,58 \%$ .

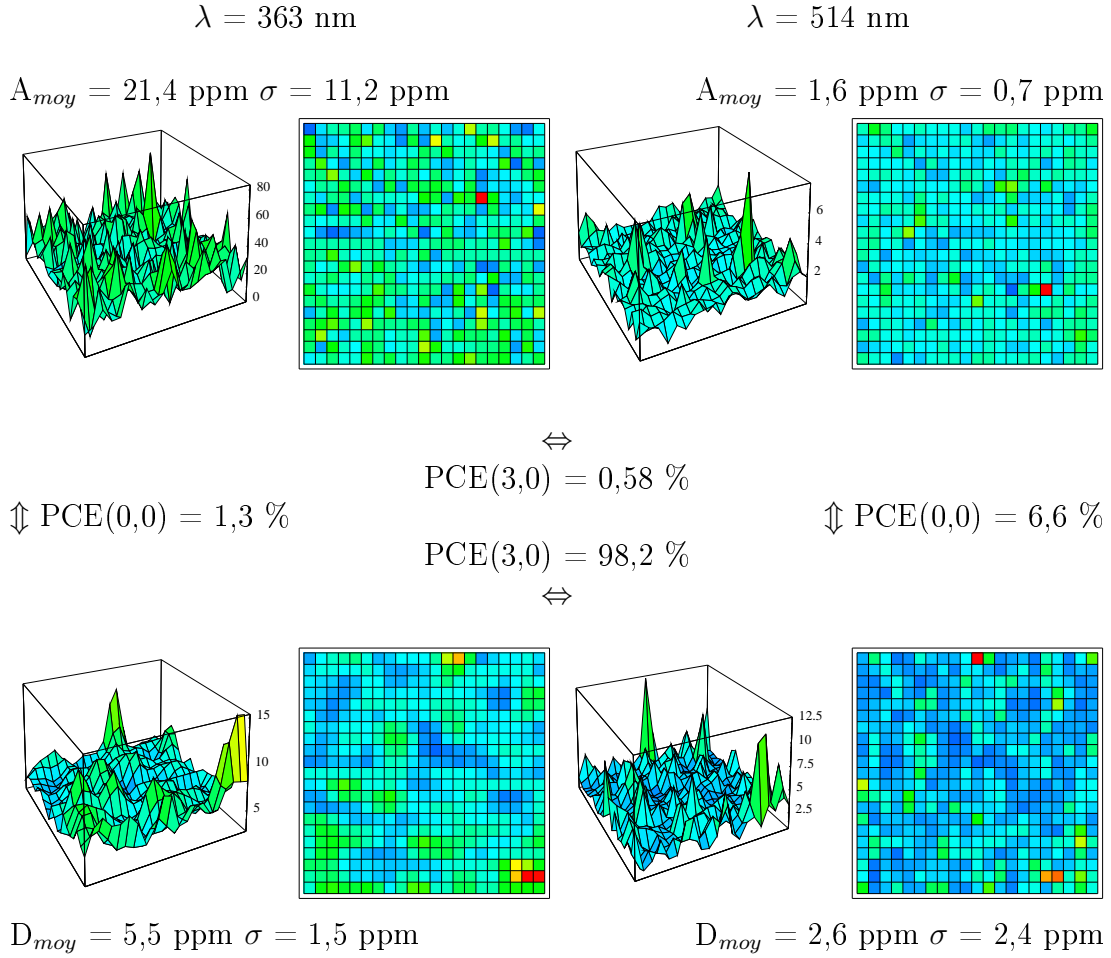


FIG. 2.8 – Absorption et diffusion à 363 nm et 514 nm d'une couche mince de  $\text{HfO}_2$ ; conditions expérimentales : diamètre du faisceau pompe = pas d'échantillonnage =  $25 \mu\text{m}$ , zone cartographiée =  $500 \mu\text{m} \times 500 \mu\text{m}$

### $\text{MgF}_2$

L'exemple suivant (figure 2.9) concerne une couche de  $\text{MgF}_2$  déposée par E.B.D. sur un substrat de silice Herasil 1 à faible température ( $30^\circ\text{C}$ ).

Les résultats sont identiques aux précédents. La diffusion ne varie pas significativement tandis que l'absorption décroît quand la longueur d'onde augmente ; les corrélations entre absorption et diffusion sont toujours négligeables quelle que soit la longueur d'onde ( $\text{PCE} = 0,14 \%$  à 363 nm et  $\text{PCE} = 0,1 \%$  à 514 nm) ; la corrélation entre cartographies de diffusion, bien que plus faible que les précédentes est non négligeable et se produit en (0,0) ( $\text{PCE}(0,0) = 14,5 \%$ ), tandis que la corrélation entre cartographies d'absorption est toujours négligeable ( $\text{PCE}(0,0) = 0,12 \%$ ).

## 2.5. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

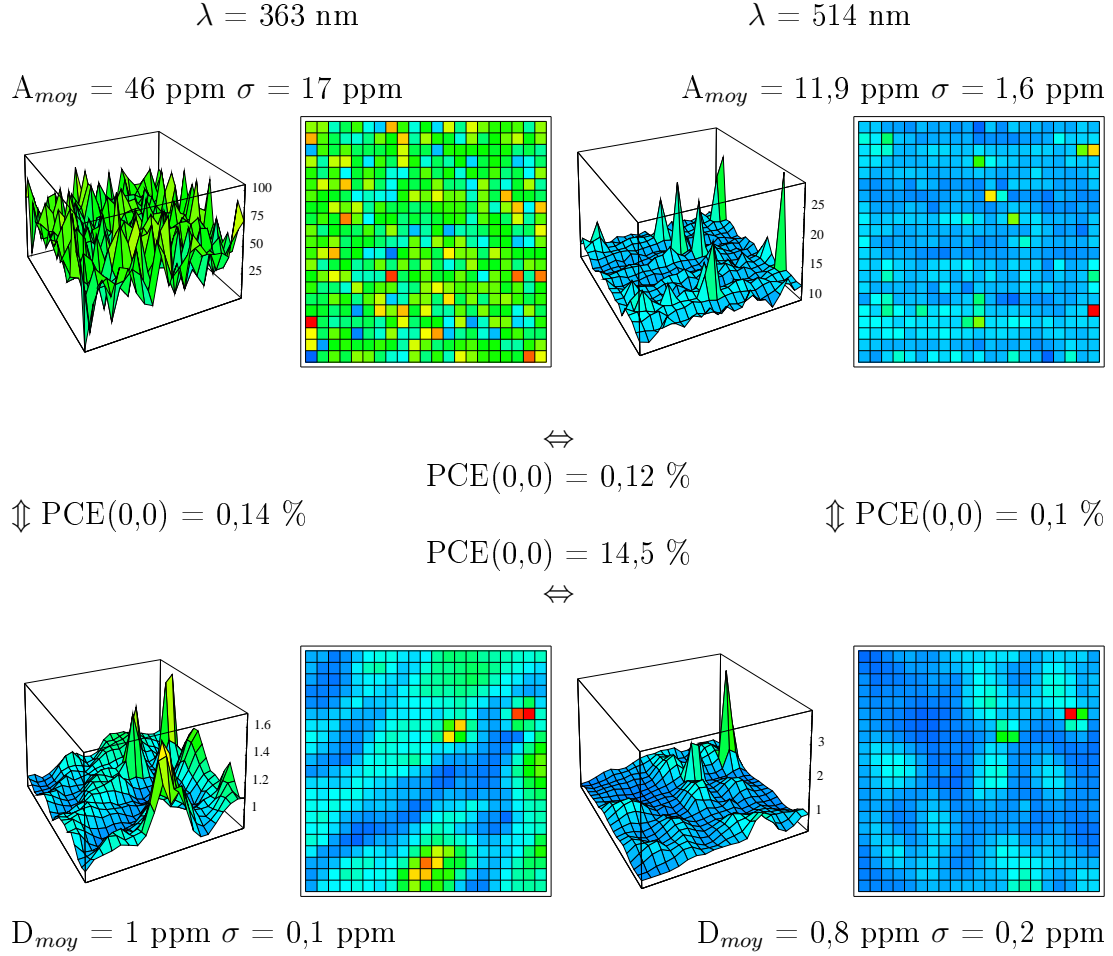
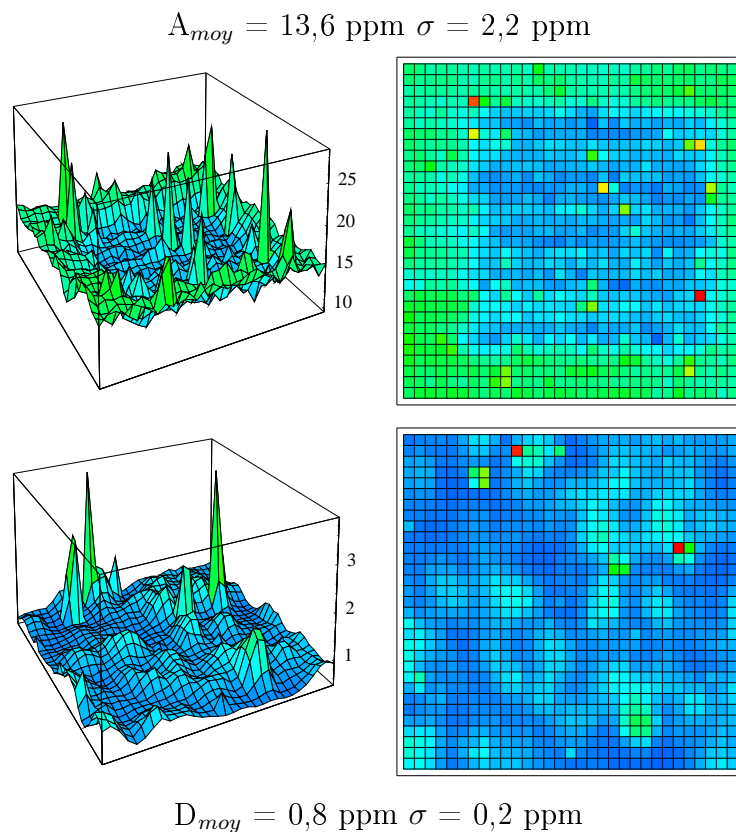


FIG. 2.9 – Absorption et diffusion à 363 nm et 514 nm d’une couche mince de  $\text{MgF}_2$ ; conditions expérimentales : diamètre du faisceau pompe = pas d’échantillonnage =  $25 \mu\text{m}$ , zone cartographiée =  $500 \mu\text{m} \times 500 \mu\text{m}$

Cependant, le comportement de cet échantillon est particulier : un effet photo-induit se produit durant la mesure dans l’UV. La figure 2.10 montre les cartographies d’absorption et de diffusion d’une surface de  $750 \mu\text{m} \times 750 \mu\text{m}$  réalisées à 514 nm, après la mesure à 363 nm, et centrées sur les cartographies de la figure 2.9.

Nous observons sur la cartographie d’absorption l’empreinte carrée laissée par la mesure à 363 nm. Cette empreinte n’est pas apparente sur la cartographie de diffusion.

Nous avons étudié plus en détail l’instabilité sous irradiation UV de cette couche ainsi que celle d’une couche de  $\text{MgF}_2$  déposée sur un substrat à température plus élevée ( $200^\circ\text{C}$ ). Pour cela nous avons mesuré l’évolution temporelle de l’absorption pour ces 2 couches. Les résultats sont représentés sur le graphe de la figure 2.10.



Cartographies d'absorption et de diffusion à 514 nm de la couche de  $\text{MgF}_2$ , centrées sur les précédentes ; conditions expérimentales : diamètre du faisceau pompe = pas d'échantillonnage =  $25\mu\text{m}$ , zone cartographiée =  $750\mu\text{m} \times 750\mu\text{m}$

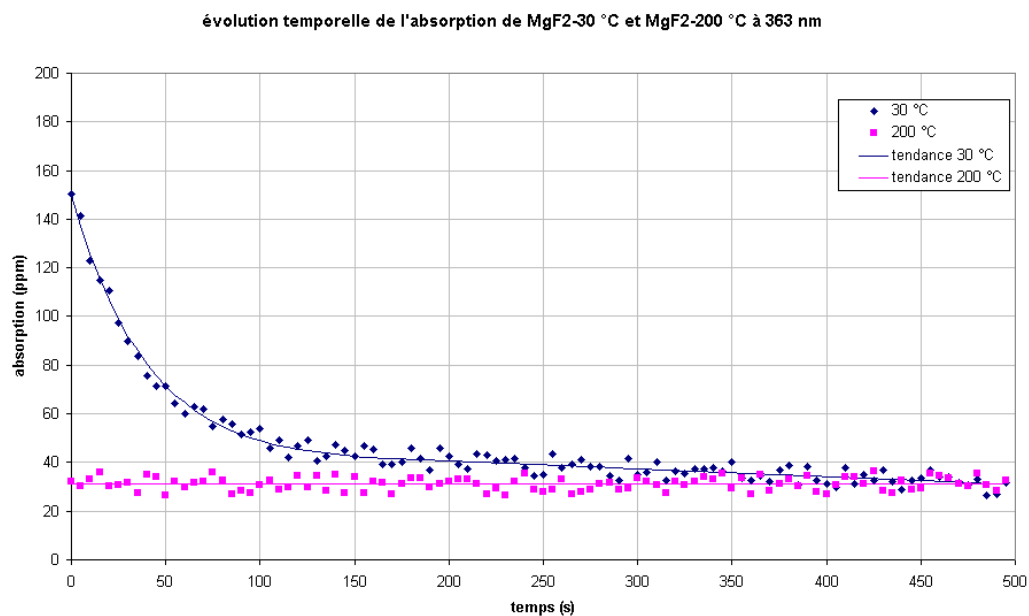


FIG. 2.10 – Evolution de l'absorption de la couche de  $\text{MgF}_2$  sous irradiation UV

En ce qui concerne la couche déposée sur un substrat à 30 °C, on constate que durant l'irradiation UV l'absorption décroît très rapidement pendant les premières dizaines de secondes : l'absorption initiale est divisée par trois en 70 secondes environ. La puissance pompe incidente étant environ de 50 mW à 363 nm et le faisceau pompe étant focalisé avec un diamètre à  $1/e^2 = 25 \mu\text{m}$ , la densité de puissance est environ de  $10 \text{ kW/cm}^2$ . Pour cet échantillon, l'absorption ne dépassant pas  $10^{-4}$ , la densité de puissance totale absorbée est au plus de  $1 \text{ W/cm}^2$ . Nous ne pouvons donc pas justifier cette décroissance de l'absorption par un effet thermique.

De tels phénomènes de décroissance photo-induite ont déjà été observés sur des couches minces de  $\text{TiO}_2$  et  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  déposées par E.B.D., mais pour des irradiations dans le domaine du visible (600 nm) [19, 21]. Ce phénomène, partiellement réversible, a été attribué à des transitions électroniques dans les couches minces de faible densité. C'est probablement un effet similaire que l'on observe dans le cas de la couche mince de  $\text{MgF}_2$  puisque cette couche est déposée sur un substrat à basse température. Dans ce cas, les couches minces obtenues ont une faible densité, qui peut être mise en évidence par des mesures spectro-photométriques de l'indice de réfraction. Cette hypothèse est confirmée par le fait qu'aucune évolution temporelle de l'absorption n'est observée dans le cas de la couche mince de  $\text{MgF}_2$  déposée sur un substrat à 200 °C. Par ailleurs, pour la couche déposée sur un substrat à 30 °C, la décroissance de l'absorption se produit également dans le visible : sur la figure 2.10, on observe, dans la zone en haut à gauche de la cartographie d'absorption, une légère empreinte carrée laissée par une précédente mesure de l'absorption à 514 nm. Ce genre d'effet photo-induit rend plus compliquée l'interprétation de la corrélation entre les cartographies.

### 2.5.3 Cas particulier de corrélations entre cartographies d'absorption pour différentes longueurs d'onde

#### $\text{Sc}_2\text{O}_3$

Un seul cas de corrélation entre cartographies d'absorption à 363 nm et 514 nm a pu être observé. La figure 2.11 montre les résultats obtenus pour une couche de  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  déposée sur un substrat de silice. De même que précédemment, la diffusion ne varie pas significativement alors que l'absorption décroît considérablement quand la longueur d'onde augmente et les corrélations entre absorption et diffusion sont toujours négligeables quelle que soit la longueur d'onde (PCE = 0,41 % à 363 nm et PCE = 0,57 % à 514 nm). Par ailleurs, on observe des valeurs élevées de l'absorption et de la diffusion. En effet cet échantillon a subi de nombreuses manipulations et sa surface a manifestement été fortement contaminée.

Cette contamination est probablement responsable de la forte corrélation observée entre les cartographies d'absorption à 363 nm et 514 nm : on obtient  $\text{PCE}(0,0) = 90,8 \%$ . La corrélation entre cartographies de diffusion, elle, est bien



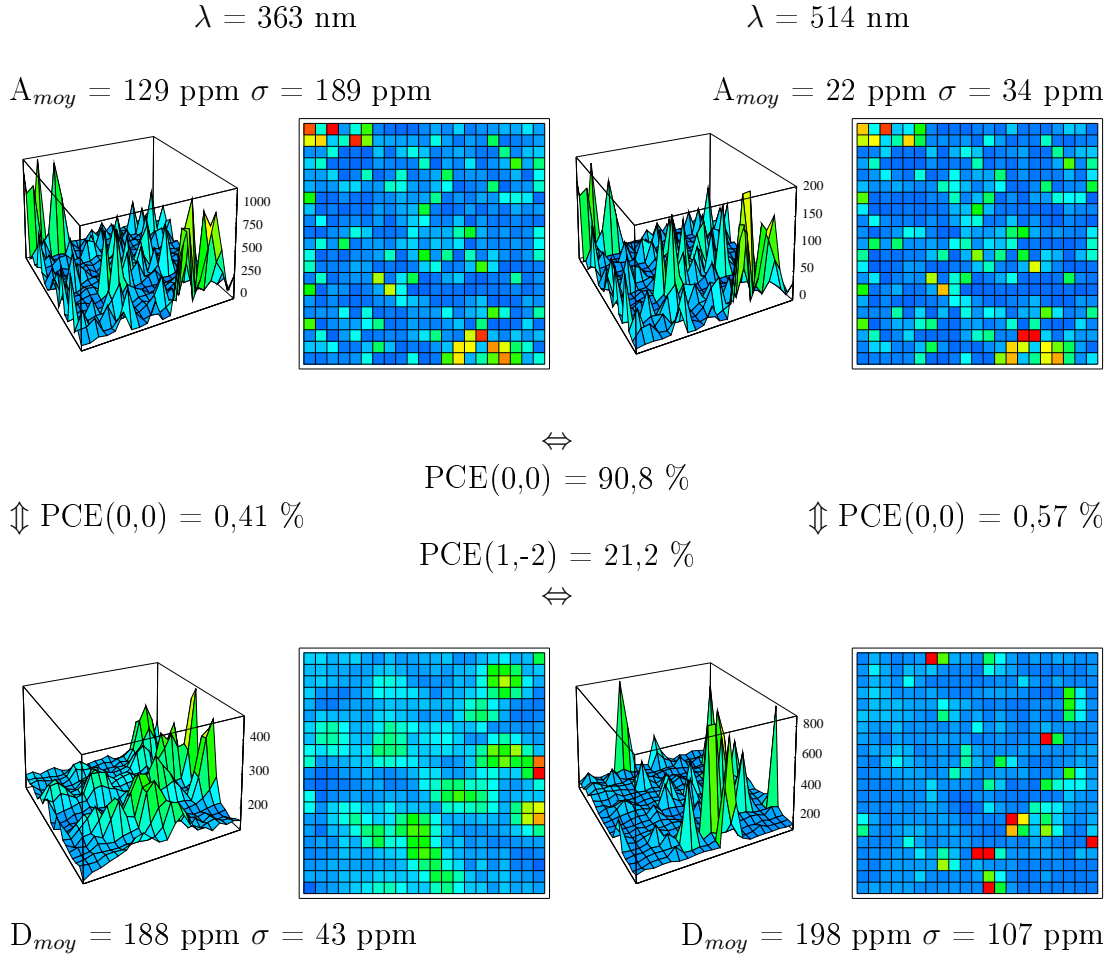


FIG. 2.11 – Absorption et diffusion à 363 nm et 514 nm de couche mince de  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  ; conditions expérimentales : diamètre du faisceau pompe = pas d'échantillonnage =  $25 \mu\text{m}$ , zone cartographiée =  $500 \mu\text{m} \times 500 \mu\text{m}$

inférieure mais non négligeable : on obtient  $\text{PCE}(1,-2) = 21,2 \%$ . Ce qui est surprenant ici est que la fonction d'intercorrélation des cartographies d'absorption ne présente pas son maximum au même point que celle des cartographies de diffusion. En effet, les mesures d'absorption et de diffusion étant simultanées, s'il y a corrélation entre 2 cartographies d'absorption et entre 2 cartographies de diffusion (ce qui est le cas ici), le maximum de la corrélation doit forcément se produire au même point dans les 2 cas. Le décalage observé ici entre les maxima des 2 fonctions de corrélation ne peut s'expliquer que par le fait qu'un des éléments de la cellule de diffusion a été déplacé entre les mesures. Par exemple, si la lentille récoltant la lumière diffusée est légèrement décalée, la lumière diffusée n'est plus mesurée aux mêmes angles, ce qui peut expliquer le phénomène observé. En particulier, si l'on se rapproche du spéculaire, la différence peut être considérable.

### 2.5.4 Etude à trois longueurs d'onde

#### HfO<sub>2</sub>

Sur un dernier échantillon nous avons pu comparer les cartographies d'absorption et de diffusion à 3 longueurs d'onde : 363 nm, 514 nm et 1064 nm. Les mesures à 1064 nm ont été réalisées avec un laser YAG, sur le banc du microscope photothermique décrit dans le chapitre 3. Sur ce dernier, le faisceau pompe et le faisceau sonde étant parfaitement colinéaires, les mesures d'absorption et de diffusion simultanées sont impossibles. En effet, on ne peut dissocier simplement la diffusion du faisceau pompe de celle du faisceau sonde dans cette configuration. Des mesures d'absorption et de diffusion successives ont donc été réalisées, avec un faisceau sonde occulté pour la mesure de la diffusion. Les résultats sont présentés sur la figure 2.12.

Même si les cartographies à 1064 nm n'ont pas été réalisées sur le même banc de mesures et dans les mêmes conditions expérimentales que les cartographies à 363 nm et 514 nm, des résultats similaires aux précédents (sauf cas de la couche de scandium) sont obtenus.

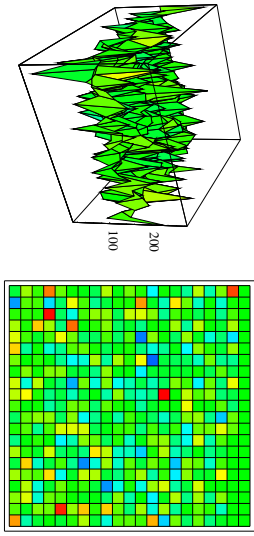
La diffusion ne varie pas significativement tandis que l'absorption décroît quand la longueur d'onde augmente. Les corrélations entre absorption et diffusion sont toujours négligeables quelle que soit la longueur d'onde ( $PCE = 0,04\%$  à 363 nm,  $PCE = 0,4\%$  à 514 nm et  $PCE = 2,1\%$  à 1064 nm). La corrélation entre cartographies de diffusion est élevée :  $PCE(1,2) = 82,1\%$  entre 363 nm et 514 nm,  $PCE(0,0) = 86,2\%$  entre 514 nm et 1064 nm. La corrélation entre cartographies d'absorption est toujours négligeable :  $PCE(1,2) = 0,08\%$  entre 363 nm et 514 nm et  $PCE(0,0) = 0,3\%$  entre 514 nm et 1064 nm.

La réalisation de mesures sur 2 bancs différents pose des problèmes pratiques. Tout d'abord, des problèmes de repositionnement se sont posés du fait de l'utilisation de deux porte-échantillons différents. En fait nous avons pu être certains du bon repositionnement de l'échantillon seulement parce qu'il présentait en diffusion un gros défaut facilement repérable. Par ailleurs, la durée de mesure est doublée, du fait que les cartographies d'absorption et de diffusion ne sont pas mesurées simultanément mais successivement. Les mesures réalisées sur d'autres échantillons ayant été longues et peu concluantes (impossibilité de certifier le repositionnement), elles ont été abandonnées.

Cependant, cette étude à 3 longueurs d'onde est particulièrement intéressante puisqu'elle permet d'étendre à l'Infra Rouge les résultats obtenus dans l'Ultra Violet et le visible : absence de corrélation entre cartographies d'absorption et de diffusion quelle que soit la longueur d'onde, corrélation (plus ou moins élevée) des cartographies de diffusion à différentes longueurs d'onde et enfin absence de

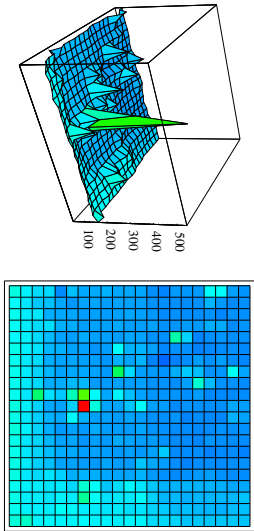
$\lambda = 363 \text{ nm}$

$A_{moy} = 132 \text{ ppm}$   $\sigma = 43 \text{ ppm}$



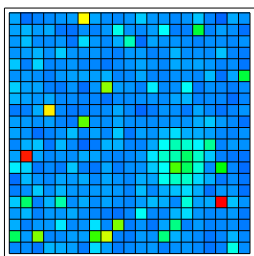
$\lambda = 514 \text{ nm}$

$A_{moy} = 102 \text{ ppm}$   $\sigma = 33 \text{ ppm}$



$\lambda = 1064 \text{ nm}$

$A_{moy} = 6 \text{ ppm}$   $\sigma = 8 \text{ ppm}$



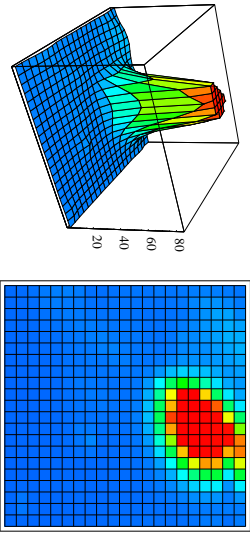
$\Downarrow \text{PCE}(0,0) = 0,04 \%$

$\Leftrightarrow \text{PCE}(1,2) = 0,08 \%$   
 $\Downarrow \text{PCE}(0,0) = 0,4 \%$

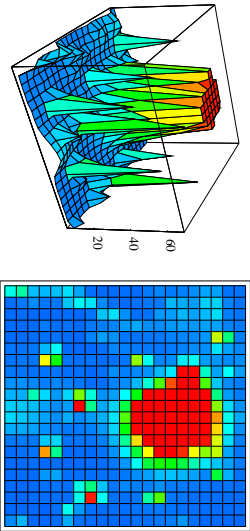
$\text{PCE}(1,2) = 82,1 \%$   $\Leftrightarrow \text{PCE}(0,0) = 86,2 \%$

$\Downarrow \text{PCE}(0,0) = 2,1 \%$

$D_{moy} = 11,5 \text{ ppm}$   $\sigma = 21 \text{ ppm}$



$D_{moy} = 17 \text{ ppm}$   $\sigma = 18 \text{ ppm}$



$D_{moy} = 5,6 \text{ ppm}$   $\sigma = 2 \text{ ppm}$

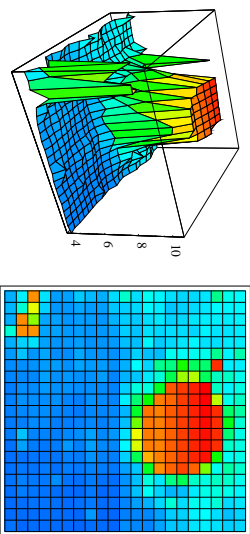


Fig. 2.12 – Absorption et diffusion à 363 nm, 514 nm et 1064 nm d'une couche mince de  $\text{HfO}_2$  ; conditions expérimentales : diamètre du faisceau pompe = pas d'échantillonnage =  $25 \mu\text{m}$ , zone cartographiée =  $500 \mu\text{m} \times 500 \mu\text{m}$

corrélation des cartographies d'absorption à différentes longueurs d'onde. On peut donc penser que ces résultats, observés à 363 nm, 514 nm et dans un cas à 1064 nm peuvent se généraliser à toutes les longueurs d'onde, qu'elles appartiennent au domaine de l'Ultra Violet, du visible et de l'Infra Rouge.

## 2.6 Conclusion

Nous avons étudié les propriétés des défauts absorbants et diffusants pour des longueurs d'onde de l'Ultra-Violet, du visible et de l'Infra-Rouge. L'utilisation d'un outil de comparaison basé sur la corrélation des différentes cartographies s'est avéré indispensable pour caractériser objectivement et quantitativement la ressemblance de deux cartographies.

Les résultats obtenus pour différentes couches minces et un substrat nu sont similaires. La valeur moyenne de la diffusion ne varie pas significativement, tandis que la valeur moyenne de l'absorption décroît fortement quand la longueur d'onde augmente. Les corrélations entre cartographies d'absorption et de diffusion sont très faibles quelle que soit la longueur d'onde. Par contre, la corrélation entre les cartographies de diffusion à plusieurs longueurs d'onde est relativement élevée, contrairement à la corrélation entre les cartographies d'absorption à plusieurs longueurs d'onde. Un seul cas de corrélation entre les cartographies d'absorption a été observé, et il a pu être associé une forte contamination surfacique de l'échantillon.

Une comparaison systématique des cartographies d'absorption et de diffusion entre une longueur d'onde de l'Ultra Violet (363 nm) et une longueur d'onde du visible (514 nm) a été effectuée. Nous avons également montré que les résultats obtenus pouvaient s'étendre à l'Infra Rouge (1064 nm).

Ainsi, la forte dépendance de l'absorption des défauts avec la longueur d'onde met en évidence la nécessité de caractériser l'absorption des composants optiques à leur longueur d'onde d'utilisation. En particulier, les mesures d'absorption et les tests d'endommagements doivent être faits à la même longueur d'onde. Dans le chapitre suivant, nous présentons la réalisation expérimentale d'un microscope photothermique couplé à un dispositif de test d'endommagement laser à la même longueur d'onde.



## Chapitre 3

# Réalisation d'un dispositif couplé de microscopie photothermique et d'endommagement laser

### 3.1 Résumé

Dans le but de détecter des nano-défauts absorbants de manière non destructive et de comprendre leur rôle dans l'endommagement laser, un nouveau dispositif expérimental a été mis au point. Il s'agit d'un microscope photothermique couplé à un dispositif de test d'endommagement laser à la même longueur d'onde.

Le microscope est basé sur la déflexion photothermique d'un faisceau sonde transmis. Le faisceau pompe continu, de longueur d'onde  $1,06\ \mu\text{m}$  et le faisceau sonde sont colinéaires et focalisés à travers le même objectif. Le diamètre du faisceau pompe sur la surface de l'échantillon peut atteindre  $1\ \mu\text{m}$ . Dans cette configuration, les cartographies photothermiques donnent les variations spatiales de l'absorption dans l'échantillon mais l'étalonnage en termes d'absorption donne au mieux un ordre de grandeur.

Les tests d'endommagement laser sont réalisés grâce à un laser pulsé de longueur d'onde  $1,06\ \mu\text{m}$  et de durée d'impulsion  $7\ \text{ns}$ . Le positionnement du faisceau sur la surface de l'échantillon est contrôlé par une camera CCD.

## 3.2 Introduction

L'endommagement laser dans les matériaux optiques est reconnu comme étant un phénomène localisé associé à la présence de défauts de taille micronique et sub-micronique [36, 42, 97]. Les variations locales des propriétés optiques ou thermiques induites par ces défauts peuvent conduire à l'endommagement du matériau. Pour détecter des défauts les plus petits possibles, des dispositifs d'imagerie combinant haute détectivité et haute résolution sont nécessaires.

De nombreuses techniques ont été développées pour étudier les défauts locaux dans l'endommagement laser. Parmi elles on peut citer la microscopie optique en mode fond noir et Nomarski, la microscopie à réflexion interne totale [34–37], les mesures de diffusion [38–40], la microscopie à force atomique [32, 33], la microscopie électronique à balayage [41, 42] et la microscopie optique à balayage en champ proche [43–45]. Ces techniques sont sensibles principalement aux inhomogénéités de structure et aux variations d'indice de réfraction. Elles permettent de détecter plusieurs types de défauts mais ne donnent aucune information directe sur l'absorption et les phénomènes thermo-physiques impliqués dans l'endommagement.

La technique de déflexion photothermique est largement utilisée pour caractériser avec une haute sensibilité les composants optiques d'absorption faible ainsi que pour cartographier les défauts absorbants. Nous avons vu de plus qu'il est possible d'augmenter simplement la résolution latérale des dispositifs de déflexion photothermique en focalisant fortement le faisceau pompe et en diminuant le pas d'échantillonnage. Nous nous proposons de réaliser un dispositif de microscopie photothermique en configuration colinéaire pour lequel les faisceaux pompe et sonde sont focalisés à travers le même objectif de microscope [98].

Par ailleurs, la mise en évidence de la corrélation entre la présence de défauts et l'endommagement des matériaux n'est pas aisée. De nombreux travaux ont été menés sur ce sujet, grâce à des techniques de microscopie photothermique, mais également des mesures de diffusion, de microscopie de fluorescence et de spectroscopie Raman. Le cas de substrats nus de silice fondue [99, 100] ainsi que de couches minces diélectriques (couche unique ou empilement) [99, 101–103] est étudié, mais aucune conclusion ne ressort clairement. En effet, beaucoup de paramètres, tels que longueur d'onde d'irradiation, longueur d'onde d'absorption des défauts, nature de l'empilement dans le cas d'un empilement diélectrique, entrent en jeu. De plus, le caractère destructif des tests d'endommagement laser entraîne l'impossibilité de reproduire l'observation, ce qui introduit une incertitude supplémentaire.

Par ailleurs, souvent, les mesures d'absorption et les mesures de tenue au flux sont réalisées sur des dispositifs expérimentaux différents, parfois mêmes dans des laboratoires différents, ce qui implique de nombreux inconvénients : le positionnement précis des échantillons sur un banc de mesure puis sur l'autre est difficile à réaliser, l'utilisation de lasers différents sur les 2 bancs de mesure complique l'interprétation des résultats, les risques de contamination de l'échantillon lors du

déplacement ne sont pas négligeables. Ainsi, il n'a jamais été possible d'étudier avec certitude le comportement des défauts absorbants lors d'irradiations.

Pour résoudre ce problème, nous munissons le microscope photothermique d'un dispositif de test d'endommagement. Ce dispositif est constitué d'un laser source de même longueur d'onde que le laser pompe du microscope photothermique et d'un système d'imagerie permettant le positionnement au micron près du laser source sur l'échantillon étudié. Ce nouveau dispositif permet donc de comparer in situ des mesures de microscopie photothermique à des mesures de tenue au flux ainsi que d'étudier l'évolution de l'absorption d'un défaut localisé avec l'irradiation.

Nous présentons tout d'abord la réalisation expérimentale du microscope photothermique et sa caractérisation. En particulier une résolution meilleure que  $1\text{ }\mu\text{m}$  est démontrée sur des échantillons spécialement fabriqués présentant des motifs absorbants non isolés de  $1\text{ }\mu\text{m}$  de diamètre. Un exemple d'application à l'imagerie haute résolution est alors présenté : dans le cadre d'une collaboration avec le CEA/Ile de France, une étude des variations relatives d'absorption, induites par des irradiations laser, a été menée. Le paragraphe 3.4 est consacré à la mise en place du dispositif d'endommagement laser sur le banc du microscope photothermique. Nous détaillons dans le paragraphe 3.5 la procédure expérimentale et son optimisation en termes de détectivité et de durée d'acquisition.

## 3.3 Microscope photothermique

Pour détecter des absorptions faibles et localiser des défauts de petite taille, le dispositif de mesure doit posséder à la fois une haute résolution et une haute détectivité. Nous devons donc focaliser à la fois le faisceau pompe, pour augmenter la résolution, et le faisceau sonde, pour conserver une bonne détectivité.

Pour résoudre les problèmes d'encombrement liés à l'utilisation de 2 objectifs de fort grossissement et de très petite distance de travail, nous choisissons de n'en utiliser qu'un seul et de travailler en mode colinéaire : le faisceau pompe et le faisceau sonde, parfaitement parallèles, sont focalisés à travers le même objectif et ont donc approximativement la même taille sur la surface de l'échantillon.

Le schéma du dispositif du microscope photothermique est décrit figure 3.1.

Ce nouveau dispositif est entièrement automatisé. Pour cela, un programme en C++ a été mis au point. Il commande la détection synchrone permettant l'acquisition du signal et les platines de translation de résolution  $0,1\text{ }\mu\text{m}$  permettant le déplacement latéral de l'échantillon. Des cartographies d'absorption avec un pas d'échantillonnage de  $0,1\text{ }\mu\text{m}$  sont donc rendues possibles et une résolution de l'ordre de  $0,1\text{ }\mu\text{m}$  est envisageable. La question de la résolution est détaillée paragraphe 3.3.4. Par ailleurs, on peut également faire tourner l'échantillon, et ainsi mesurer l'absorption à d'autres angles que l'incidence normale.



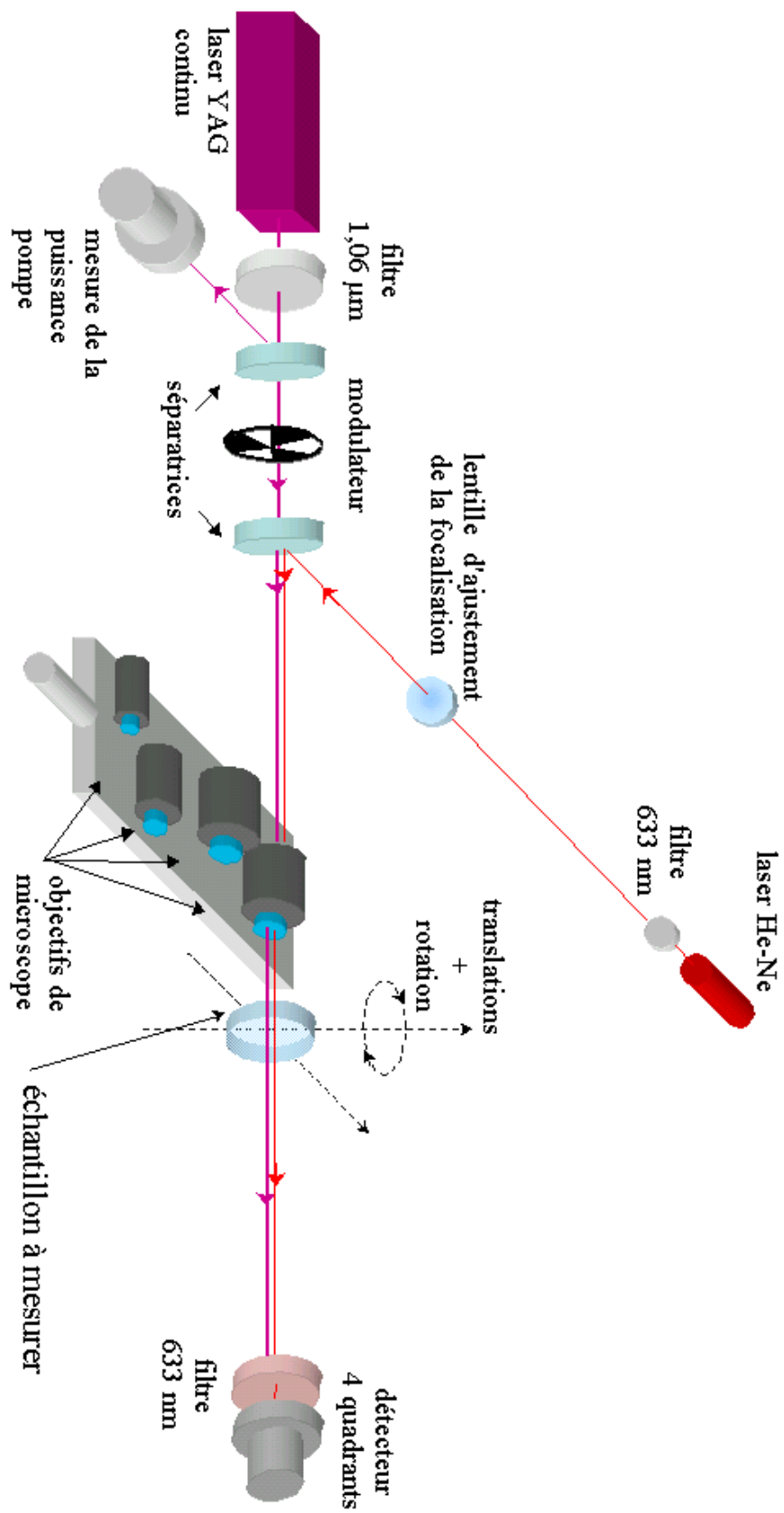


FIG. 3.1 – Schéma du dispositif expérimental

### 3.3.1 Les lasers

#### Le laser pompe

Le laser pompe utilisé est un laser Nd :YAG continu. Ses spécifications sont résumées dans le tableau 3.1.

longueur d'onde	1064 nm
mode d'émission	TEM00
puissance nominale	9,5 W
diamètre du waist de sortie (à $1/e^2$ )	0,3 mm
demi-angle de divergence du faisceau	2,3 mrad
dérive maximale de la puissance moyenne sur 8 heures	5 %
bruit rms maximal(dans la bande 1 kHz - 10 MHz)	0,1 %
stabilité angulaire du faisceau	6 $\mu$ rad
stabilité en puissance	1 % pic à pic
polarisation	verticale

TAB. 3.1 – Spécifications du laser YAG

#### Le laser sonde

Le laser sonde utilisé est un laser Hélium-Néon dont les spécifications sont données dans le tableau 3.2.

longueur d'onde	632,8 nm
mode d'émission	TEM00
puissance minimale	0,8 mW
diamètre du waist de sortie (à $1/e^2$ )	0,48 mm
demi-angle de divergence du faisceau	1,7 mrad
dérive maximale de la puissance moyenne sur 8 heures	5 %
bruit rms maximal(dans la bande 1 kHz - 10 MHz)	0,1 %
stabilité angulaire du faisceau à 25°C à froid	<0,1 mrad
stabilité angulaire du faisceau à 25°C à chaud	<0,01 mrad
polarisation	non polarisé

TAB. 3.2 – Spécifications du laser He-Ne

La stabilité angulaire de ce faisceau a une influence capitale sur le bruit des mesures du signal photothermique, comme il est expliqué au paragraphe 3.5.2. C'est pourquoi un laser sonde présentant une excellente stabilité angulaire (0,01 mrad après 15 minutes de fonctionnement) a été choisi.

### 3.3.2 Le signal mesuré

Nous avons vu dans le chapitre 1 que la détermination de la valeur de l'absorption pouvait se ramener à la mesure de la déflexion du faisceau laser sonde. Typiquement, les simulations réalisées pour une couche mince haut indice de coefficient d'extinction  $10^{-4}$  montrent que la déflexion à mesurer est de l'ordre de  $10^{-4}$  radian pour un faisceau pompe fortement focalisé (cf. chapitre 1. Pour mesurer cet angle de déviation nous avons choisi d'utiliser une photodiode à 4 quadrants. Nous utilisons en fait seulement 2 des quadrants, et nous mesurons ainsi une déflexion soit verticale, soit horizontale. Le signal photothermique, proportionnel à la déflexion du faisceau sonde, sera noté SP. Nous allons voir à présent comment le définir de manière à nous affranchir notamment des instabilités en puissance des lasers pompe et sonde.

Soient  $V_A$  et  $V_B$  les tensions délivrées par les deux quadrants utilisés du photo-détecteur. La tension  $V_{AB} = V_A + V_B$  est proportionnelle à la puissance  $P_s$  délivrée par le faisceau sonde. Le spot du faisceau sonde est positionné de manière à équilibrer approximativement les 2 quadrants utilisés ( $V_A \sim V_B$ ).

L'absorption dans un échantillon provoque, comme nous l'avons vu, une déflexion angulaire  $\theta$  du faisceau sonde, à la fréquence de modulation  $\nu$  du faisceau pompe. Ceci se traduit par un déplacement modulé de la tache du faisceau sonde sur le détecteur : un quadrant reçoit alors la puissance  $P_s/2 + \Delta P$ , tandis que l'autre reçoit alors la puissance  $P_s/2 - \Delta P$ . La variation de tension  $V_A - V_B$  qui en résulte est proportionnelle à la variation de puissance reçue  $\Delta P$ .

Montrons que  $\Delta P$  est proportionnelle en première approximation à la déflexion angulaire  $\theta$ , donc que le signal photothermique peut être défini par la différence  $V_A - V_B$ , mesurée à la fréquence  $\nu$  grâce à une détection synchrone.

Soit  $P(x,y,z)$  la densité de puissance du faisceau sonde. Le système d'axes  $(x,y,z)$  est décrit sur la figure 3.2. Le plan  $z = 0$  est défini par la face avant de l'échantillon sur laquelle sont focalisés les faisceaux pompe et sonde.

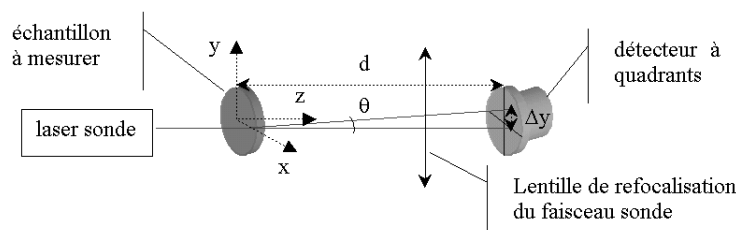


FIG. 3.2 – Détection de la déflexion du faisceau sonde

Du fait de la forte divergence du faisceau sonde après l'échantillon, nous utilisons une lentille pour le refocaliser sur le détecteur. L'influence de cette lentille sur la propagation du faisceau sonde est négligée dans les calculs qui suivent.

$P(x,y,z)$  s'écrit par définition :

$$P(x, y, z) = P_0 \left[ \frac{\omega_0}{\omega(z)} \right]^2 \exp \left[ \frac{-2(x^2 + y^2)}{\omega^2(z)} \right] \quad (3.1)$$

avec :

$P_0$  : intensité du faisceau sur l'axe optique ( $x = y = 0$ ) et pour  $z = 0$

$\omega_0$  : rayon à  $1/e^2$  du faisceau dans le plan  $z = 0$

$\omega(z)$  : rayon à  $1/e^2$  du faisceau dans le plan  $z$

On peut aisément calculer par intégration de la densité de puissance sonde dans un plan transverse  $z$  la puissance totale  $P_s$  transportée par le faisceau gaussien :

$$P_s = \frac{1}{2} I_0 \pi \omega_0^2 \quad (3.2)$$

On en déduit que :

$$I(x, y, z) = \frac{2P_s}{\pi \omega^2(z)} \exp \left[ \frac{-2(x^2 + y^2)}{\omega^2(z)} \right] \quad (3.3)$$

Le déplacement  $\Delta y$  de la tache du faisceau sonde sur le détecteur est tel que :  $\Delta y = d \cdot \tan \theta$  où  $d$  est la distance entre la face avant de l'échantillon et le détecteur.

Lorsque le spot du faisceau sonde se déplace de  $\Delta y$  le long de l'axe ( $Oy$ ), le flux reçu par chacun des deux quadrants du détecteur varie de  $\pm \Delta P$ .

Pour  $\theta = 10^{-4}$  radians et  $d = 1$  m, on a  $\Delta y = 0,1$  mm. Le spot du faisceau sonde ayant une surface de l'ordre quelques dizaines de  $\text{mm}^2$  et étant approximativement centré sur les 2 quadrants utilisés, on peut écrire :

$$\Delta P \simeq P_s(y=0, z) \Delta y$$

avec  $P_s(y, z) = \int P(x, y, z) dx$  :

$$P_s(y, z) = \frac{2P_s}{\sqrt{2\pi}\omega(z)} \exp \left[ \frac{-2y^2}{\omega^2(z)} \right] \quad (3.4)$$

Comme  $\theta$  est faible, on peut écrire  $\Delta y \sim d \cdot \theta$  et on obtient alors, en notant  $\omega$  le rayon à  $1/e^2$  de la tache du laser sonde dans le plan du détecteur :

$$\boxed{\Delta P \simeq P_s(y=0) \Delta y \simeq \frac{2P_s}{\sqrt{2\pi}\omega(d)} d\theta} \quad (3.5)$$

### CHAPITRE 3. RÉALISATION D'UN DISPOSITIF COUPLÉ DE MICROSCOPIE PHOTOTHERMIQUE ET D'ENDOMMAGEMENT LASER

Ainsi, on peut définir pour commencer le signal photothermique  $SP_0$  par la mesure  $V_A - V_B$ . Cette mesure est faite par la détection synchrone sur laquelle est envoyé le signal fourni par le détecteur à quadrants. On obtient :

$$SP_0 \propto \frac{2P_s}{\sqrt{2\pi}\omega(d)} d\theta \quad (3.6)$$

A ce stade, nous pouvons déjà nous affranchir de certains bruits simplement par détection d'un signal approprié.

Tout d'abord,  $SP_0$  étant proportionnel à la puissance du laser sonde  $P_s$ , toute instabilité ou dérive en puissance de ce dernier peut générer du bruit. Or  $P_s$  étant proportionnelle à la somme des tensions délivrées par les quadrants de la photodiode, on peut aisément éliminer cette dérive en divisant le signal par  $V_A + V_B$ .

De plus, il est clair que la déflexion angulaire  $\theta$  est proportionnelle à la puissance du laser pompe  $P_p$ .  $SP_0$  lui est donc également proportionnel. De même que précédemment, il faut donc s'affranchir des instabilités en puissance du laser pompe pour éliminer le bruit qu'elles génèrent. Pour cela, une faible partie du faisceau pompe est dévié vers une photodiode au germanium. Il suffit alors pour corriger du bruit d'instabilité en puissance du laser pompe, de diviser le signal photothermique par la tension  $V_0$  délivrée par la photodiode.

Finalement, le signal photothermique  $SP$  est défini arbitrairement par :

$$SP = \frac{1}{V_0} \frac{V_A - V_B}{V_A + V_B} \quad (3.7)$$

Notons que les mesures de  $V_A - V_B$ ,  $V_A$ ,  $V_B$  et  $V_0$  sont déclenchées par le programme d'acquisition et sont simultanées.

La maximisation du signal photothermique se fait par le positionnement précis des faisceaux pompe et sonde l'un par rapport à l'autre. Nous avons vu dans le chapitre 1 que la déflexion photothermique est proportionnelle à la dérivée de la distribution de température. Pour avoir un signal photothermique maximal, il faut donc que le faisceau sonde coïncide avec le maximum de la pente de la gaussienne pompe, comme représenté sur la figure 3.3.

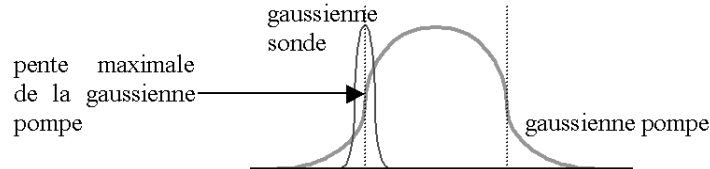


FIG. 3.3 – Position relative des faisceaux pompe et sonde

Ce réglage de la position relative des faisceaux pompe et sonde est d'autant plus délicat que le faisceau pompe n'est pas visible et qu'il est fortement focalisé.

Un premier réglage grossier est donc réalisé grâce au dispositif de visualisation par camera CCD décrit dans le paragraphe 3.4.2. Le réglage fin se fait par la maximisation du signal délivré par la détection synchrone.

Le faisceau sonde servant de référence pour le positionnement de l'échantillon, c'est le faisceau pompe qui est déplacé de manière à maximiser le signal. Du fait des faibles déplacements à réaliser et de la précision recherchée, on utilise des platines de translation de précision 0,1  $\mu\text{m}$ .

De plus, le positionnement du waist pompe sur la surface de l'échantillon est critique pour un diamètre de faisceau de 1  $\mu\text{m}$  à cause de la forte divergence du faisceau. Ce réglage se fait donc ici encore avec une platine de translation de précision 0,1  $\mu\text{m}$ . Une lentille d'ajustement de la focalisation du faisceau sonde sur la surface de l'échantillon est placée sur le trajet du faisceau de manière à corriger les aberrations chromatiques.

#### 3.3.3 L'étalonnage

Le dispositif de déflexion photothermique fournit uniquement la valeur du signal photothermique SP. Nous avons vu que ce signal était proportionnel à l'absorption A recherchée, par l'intermédiaire de la déflexion angulaire  $\theta$ . Pour avoir accès à la valeur de l'absorption, il suffit alors de déterminer ce rapport de proportionnalité, que l'on appellera coefficient d'étalonnage [16, 17, 22]. Ce coefficient d'étalonnage est en fait l'inverse de la réponse du dispositif expérimental à un échantillon absorbant, c'est à dire l'inverse de la sensibilité.

Nous utilisons pour cela des échantillons étalons, d'absorption suffisamment élevée pour être correctement mesurée par spectrophotométrie. L'étalonnage consiste alors à comparer la valeur de l'absorption obtenue avec celle du signal photothermique mesuré.

On détermine l'absorption d'un échantillon grâce à l'opération suivante :

$$\frac{A}{SP} = \frac{A_{et}}{SP_{et}} \quad (3.8)$$

$$\Rightarrow \boxed{A = ET.SP} \text{ avec } \boxed{ET = \frac{A_{et}}{SP_{et}}} \quad (3.9)$$

avec :

A : absorption de l'échantillon étudié (à déterminer)

SP : signal photothermique de l'échantillon

$A_{et}$  : absorption de l'étalon (déterminée par spectrophotométrie)

$SP_{et}$  : signal photothermique de l'étalon

ET : coefficient d'étalonnage

### CHAPITRE 3. RÉALISATION D'UN DISPOSITIF COUPLÉ DE MICROSCOPIE PHOTOTHERMIQUE ET D'ENDOMMAGEMENT LASER

---

La première hypothèse faite sur ce calcul est forte : nous supposons que le rapport de proportionnalité  $A/SP$  est le même quel que soit l'échantillon étudié. Nous allons voir dans quelles limites ceci est vrai et comment limiter les incertitudes sur la mesure en utilisant des échantillons étalons appropriés.

Dans le cas de la configuration colinéaire et pour des faisceaux pompes peu focalisés (diamètre de faisceau supérieur à  $10\text{ }\mu\text{m}$ ), il a été montré que le coefficient de proportionnalité dépend surtout des propriétés optiques et thermiques du substrat. Il est donc impératif que le substrat de l'étalon soit strictement identique à celui de l'échantillon étudié. Le coefficient de proportionnalité peut également dépendre des propriétés de la couche (épaisseur, indice de réfraction, coefficient thermique de l'indice). Il a été montré que pour des couches d'épaisseur inférieure au micron et pour des faisceaux pompes de diamètre supérieur à  $10\text{ }\mu\text{m}$ , cette influence est négligeable [90].

Finalement, dans le cas de couches thermiquement minces, la principale difficulté de l'étalonnage consiste à réaliser des étalons appropriés. Pour obtenir des couches absorbantes, il est nécessaire de réaliser le dépôt en diminuant la pression partielle d'oxygène. Les couches obtenues sont alors non stoechiométriques et peuvent évoluer au cours du temps ou sous le flux laser. De plus, ce processus permet de contrôler efficacement la transmission ou la réflexion de l'échantillon, mais il n'en est pas de même du contrôle de l'absorption et la répétabilité est difficile à obtenir. Nous avons donc choisi de réaliser des étalons non pas par dépôt de couches minces mais par implantation ionique [104].

Le principal avantage de cette technique est qu'elle permet de maîtriser le niveau d'absorption des étalons beaucoup plus facilement que dans le cas du dépôt de couches minces. L'énergie et la dose des ions à implanter étant les seuls paramètres à contrôler, il suffit de fixer un des paramètres et de faire varier l'autre pour contrôler l'absorption de l'échantillon.

Une autre limite de la technique d'étalonnage est qu'elle suppose la linéarité du signal photothermique en fonction de l'absorption sur plusieurs décades : typiquement, l'absorption de l'étalon est de  $10^{-2}$  tandis que celle d'un échantillon classique est de l'ordre de  $10^{-6}$ . La vérification expérimentale de cette hypothèse n'étant pas aisée, le meilleur compromis consiste à utiliser des étalons d'absorption intermédiaire. Là encore, l'implantation ionique permet de réaliser de manière contrôlable et répétable des échantillons peu absorbants.

Nous avons donc réalisé plusieurs séries d'échantillons étalons par implantation d'ions titane dans des substrats de silice et de BK7. Les doses d'ions choisies sont  $5.10^{16}$ ,  $2.10^{16}$ ,  $5.10^{15}$ ,  $2.10^{15}\text{ cm}^{-2}$  et l'énergie d'implantation est  $70\text{ keV}$ . Les implantations ont été réalisées par la société Ion Beam Service. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 3.4.

Nous observons que l'altération des échantillons due au vieillissement est faible. De plus, on observe une bonne linéarité de l'absorption en fonction de la dose d'ions implantés et la répétabilité du procédé de fabrication est très sa-

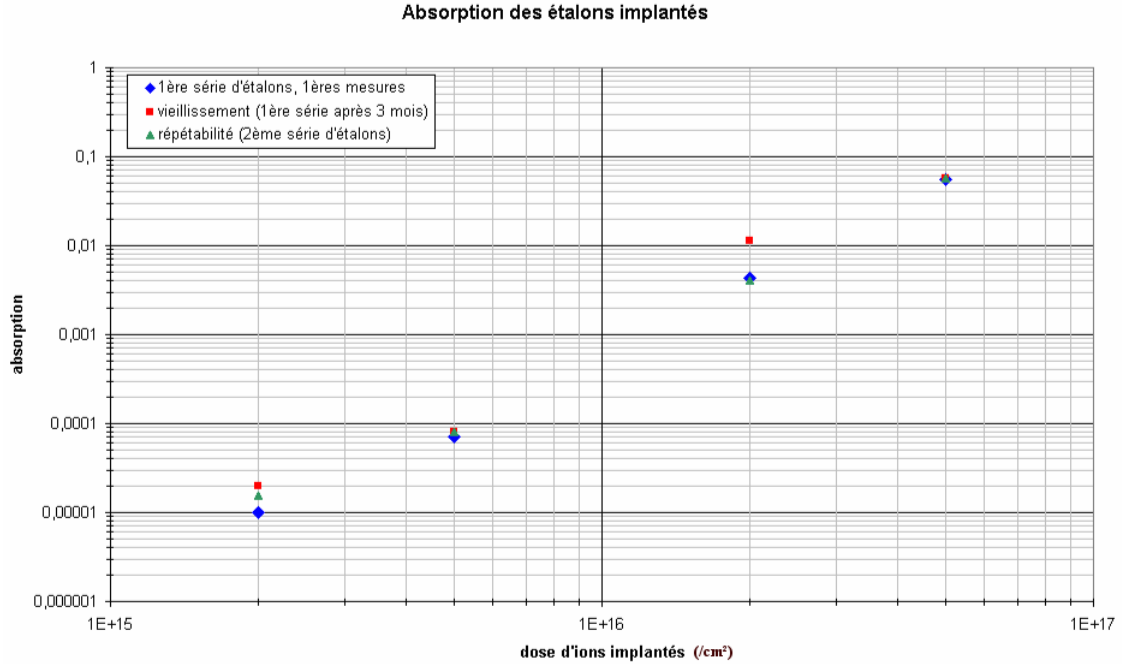


FIG. 3.4 – absorption des différents étalons

tisfaisante. Ceci montre que la fabrication d'échantillon étalons par implantation ionique est parfaitement adaptée à nos critères : maîtrise du niveau d'absorption et répétabilité.

Par ailleurs, la dispersion sur la mesure des coefficients d'étalonnage pour l'ensemble de ces étalons est seulement de 7 %, alors qu'elle est de l'ordre de 20 % pour des étalons réalisés par dépôt de couches minces [22]. Ceci confirme notre choix d'utiliser la technique d'implantation ionique pour la fabrication d'échantillons étalons.

Cependant, nous avons mis en évidence dans le chapitre 1 que pour un faisceau pompe de diamètre inférieur à  $10 \mu\text{m}$ , l'influence de la déflexion dans la couche devenait prépondérante devant celle du substrat. La mesure absolue de l'absorption est alors impossible, les variations d'absorption étant alors indissociables, notamment, des variations des propriétés thermiques de la couche.

Dans ce cas, nous ne parlerons plus de mesure d'absorption mais de microscopie photothermique : on ne s'intéresse plus à la mesure d'une valeur moyenne absolue de l'absorption mais à la détection d'inhomogénéités spatiales de l'absorption, sans chercher d'information quantitative absolue. On donnera tout de même, dans certains cas les images de microscopie photothermiques après étalonnage.



### 3.3.4 La résolution

La résolution et ses conditions d'optimisation ont été définies au paragraphe 1.4. En particulier, pour obtenir une résolution sub-micronique, une forte focalisation du faisceau pompe (diamètre à  $1/e^2$  de l'ordre de  $1\ \mu\text{m}$ ) est nécessaire. Nous allons voir dans un premier temps comment augmenter la résolution en diminuant le diamètre du waist grâce à l'utilisation d'optiques de focalisation adaptées.

Nous présentons dans un premier temps le choix des optiques de focalisation permettant d'obtenir des diamètres de faisceaux pompes variables, compris entre  $100\ \mu\text{m}$  et  $1\ \mu\text{m}$ . Nous présenterons ensuite la validation d'une résolution meilleure que  $1\ \mu\text{m}$  sur des mires absorbantes spécialement conçues.

#### Choix des optiques

Dans ce montage, une même optique de focalisation permet de faire l'image du waist de sortie du laser pompe et du laser sonde sur la surface de l'échantillon, de manière à augmenter la résolution tout en conservant une bonne sensibilité. Les optiques de focalisation sont positionnées sur une platine de translation, ce qui permet de changer de résolution automatiquement, en changeant d'optique de focalisation par simple translation.

Les diamètres de faisceau pompe que l'on souhaite obtenir sont les suivants :  $100\ \mu\text{m}$ ,  $20\ \mu\text{m}$ ,  $5\ \mu\text{m}$  et  $1\ \mu\text{m}$ . Pour choisir les optiques de focalisations optimales, une étude a été menée tenant compte non seulement de la résolution recherchée mais également des aberrations chromatiques et géométriques.

Les résultats de cette étude ont conduit aux choix résumés dans le tableau 3.3.

diamètre de waist recherché	optiques de focalisation choisies
$100\ \mu\text{m}$	lentille plan/convexe Melles Griot
$20\ \mu\text{m}$	doublet Melles Griot
$5\ \mu\text{m}$	objectif de microscope Newport x 20
$1\ \mu\text{m}$	objectif de microscope Mitutoyo x 100

TAB. 3.3 – Optiques de focalisation choisies

La détermination de la position des optiques de focalisation par rapport au plan de l'échantillon se fait grâce au logiciel Solstis. Celui-ci permet, en plus du calcul de la propagation des faisceaux gaussiens, de prendre en compte les aberrations chromatiques et géométriques introduites par l'ouverture des systèmes optiques. Son utilisation est possible pour des optiques dont on connaît toutes les caractéristiques. Les résultats obtenus sont résumés dans le tableau 3.4.

### 3.3. MICROSCOPE PHOTOTHERMIQUE

optique de focalisation	focale	distance totale waist du laser / waist image	distance face de sortie de l'optique / waist image	diamètre du waist image du YAG recherché	diamètre du waist image du YAG calculé	diamètre du waist image de l'He-Ne calculé
lentille	113,8 mm	600 mm	151 mm	100 $\mu\text{m}$	99 $\mu\text{m}$	124 $\mu\text{m}$
doublet	35,5 mm	600 mm	37,8 mm	20 $\mu\text{m}$	20 $\mu\text{m}$	28 $\mu\text{m}$
objectif x 20	9,7 mm	600 mm	9,8 mm	5 $\mu\text{m}$	4,9 $\mu\text{m}$	7,2 $\mu\text{m}$
objectif x 100	2 mm	600 mm	2 mm	1 $\mu\text{m}$	1 $\mu\text{m}$	1,4 $\mu\text{m}$

TAB. 3.4 – Focalisation avec les différentes optiques

Il est à noter que la tenue au flux, bien que n'entrant pas en jeu dans les calculs ci-dessus, est un facteur limitatif de l'utilisation des optiques de focalisation. En particulier l'utilisation de colles et les traitements de surfaces diminuent la tenue au flux. En pratique, ce sont les objectifs de microscope qui sont les plus critiques : leur seuil d'endommagement donné par le constructeur étant de  $50 \text{ W/cm}^2$ , on doit se limiter à une puissance pompe de 3,67 W.

#### Taille des faisceaux

Après avoir placé correctement les optiques de focalisation, il reste à vérifier que les waists images des faisceaux pompe et sonde se trouvent bien dans le plan de l'échantillon et que leurs diamètres sont bien ceux recherchés. Pour cela, on utilise le foucaultage ou technique du couteau.

Le principe en est le suivant. Examinons le cas d'une image de petites dimensions visualisée sur un écran situé à quelques dizaines de centimètres derrière le plan de l'image étudiée. Déplaçons une lame de couteau dans un plan voisin de celui de l'image et observons l'évolution de la tache formée sur l'écran. Si l'ombre de la lame de couteau est visible sur l'écran et qu'elle se déplace dans le même sens que le couteau, cela signifie que le plan du couteau est situé derrière le plan de l'image étudiée et inversement. Par contre, si l'ombre de la lame de couteau n'est pas visible sur l'écran et que la tache sur l'écran disparaît progressivement et de manière homogène, cela signifie que le plan du couteau coïncide exactement avec le plan de l'image étudiée.

Cette technique permet donc de déterminer avec précision la position du plan d'une image. De plus, elle permet également de caractériser la répartition d'intensité dans ce plan. Il suffit pour cela de mesurer la quantité de lumière transmise en fonction de la position de la lame dans le plan de l'image. La dérivée de cette fonction donne alors la répartition d'intensité dans ce plan.

### CHAPITRE 3. RÉALISATION D'UN DISPOSITIF COUPLÉ DE MICROSCOPIE PHOTOTHERMIQUE ET D'ENDOMMAGEMENT LASER

Après avoir positionné avec précision l'échantillon dans le plan image on peut alors vérifier que les faisceaux sont toujours gaussiens après focalisation et déterminer la taille de leurs waists dans le plan de l'échantillon. Le graphique 3.5 montre dans le cas du faisceau pompe focalisé avec l'objectif x 100 que le diamètre du waist dans le plan de l'échantillon est très proche de celui recherché : le diamètre mesuré est  $\omega = 1,1 \mu\text{m}$  alors que l'on cherchait à obtenir  $\omega = 1 \mu\text{m}$ .

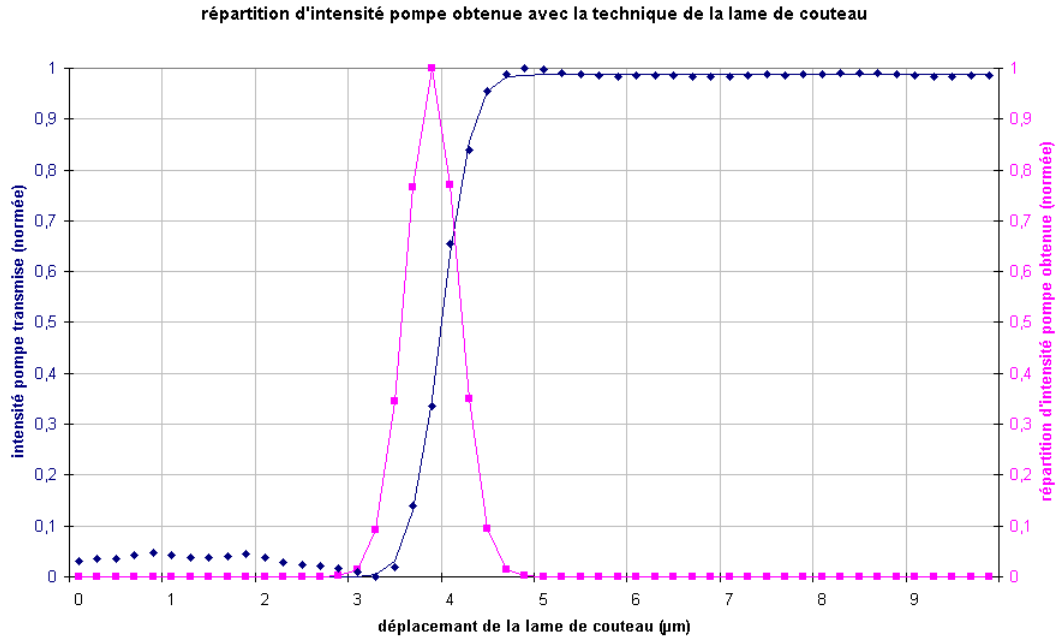


FIG. 3.5 – Détermination de diamètre du waist pompe avec l'objectif x 100

Nous avons donc vérifié expérimentalement que la taille des waists mesurée coïncidait bien avec celle prévue. Les diamètres du waist du faisceau pompe et du faisceau sonde mesurés expérimentalement pour chaque optique de focalisation sont alors ceux du tableau 3.5.

optique de focalisation	laser YAG		laser He-Ne	
	diamètre de waist recherché	diamètre de waist mesuré	diamètre de waist recherché	diamètre de waist mesuré
lentille	100 $\mu\text{m}$	106,7 $\mu\text{m}$	124 $\mu\text{m}$	111,8 $\mu\text{m}$
doublet	20 $\mu\text{m}$	25,2 $\mu\text{m}$	28 $\mu\text{m}$	25,9 $\mu\text{m}$
objectif x 20	5 $\mu\text{m}$	5,4 $\mu\text{m}$	7,2 $\mu\text{m}$	6 $\mu\text{m}$
objectif x 100	1 $\mu\text{m}$	1,1 $\mu\text{m}$	1,4 $\mu\text{m}$	2,3 $\mu\text{m}$

TAB. 3.5 – Comparaison des diamètres de waists recherchés et mesurés

On remarque que pour chaque optique de focalisation, les diamètres de waists mesurés coïncident avec ceux attendus. Notons que contrairement à l'hypothèse faite au paragraphe 1.5, le diamètre du faisceau sonde est supérieur au diamètre du faisceau pompe, pour la même optique de focalisation. Ceci n'est pas un réel problème en termes de résolution : la taille du faisceau sonde affecte la sensibilité du dispositif et non pas directement sa résolution.

Avec un faisceau pompe de waist  $1,1\ \mu\text{m}$ , on pourra détecter des défauts de taille inférieure au micromètre, si ces défauts sont suffisamment absorbants et isolés. Des tests de résolution sur des défauts absorbants de taille connue ont été réalisés.

#### Validation de la résolution

Pour valider la résolution, nous avons fabriqué une mire présentant des défauts absorbants, non isolés et de taille connue.

Pour cela nous avons utilisé une grille de microscope électronique constituée d'un film de carbone percé de trous de  $1\ \mu\text{m}$  de diamètre et distants entre eux de  $1\ \mu\text{m}$ . Une image réalisée au MEB de cette grille est représentée figure 3.6.

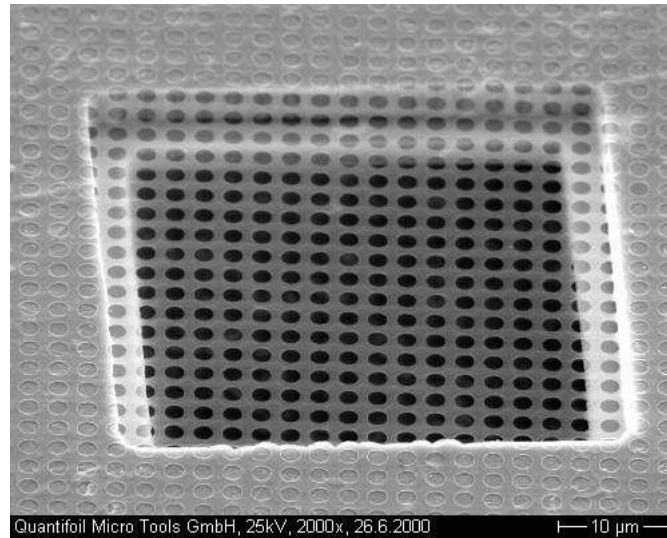


FIG. 3.6 – Image MEB de la grille de microscope électronique utilisée

Cette grille a servi de masque à une implantation d'ions titane dans un substrat de silice [104]. La dose et l'énergie ont été déterminées de manière à ce que les zones implantées soient suffisamment absorbantes mais que le film de carbone de la grille ne soit pas endommagé. Nous avons choisi une dose de  $2.10^{16}$  ions titane par  $\text{cm}^2$  et une énergie d'implantation de 70 keV. De même que pour les étalons, l'implantation a été réalisée par la société Ion Beam Service.

### CHAPITRE 3. RÉALISATION D'UN DISPOSITIF COUPLÉ DE MICROSCOPIE PHOTOTHERMIQUE ET D'ENDOMMAGEMENT LASER

---

La mire obtenue est alors un réseau de défauts absorbants non isolés, de diamètre  $1\text{ }\mu\text{m}$ , et distants entre eux de  $1\text{ }\mu\text{m}$ . Une image réalisée au microscope Nomarski de cet échantillon est présentée figure 3.7.

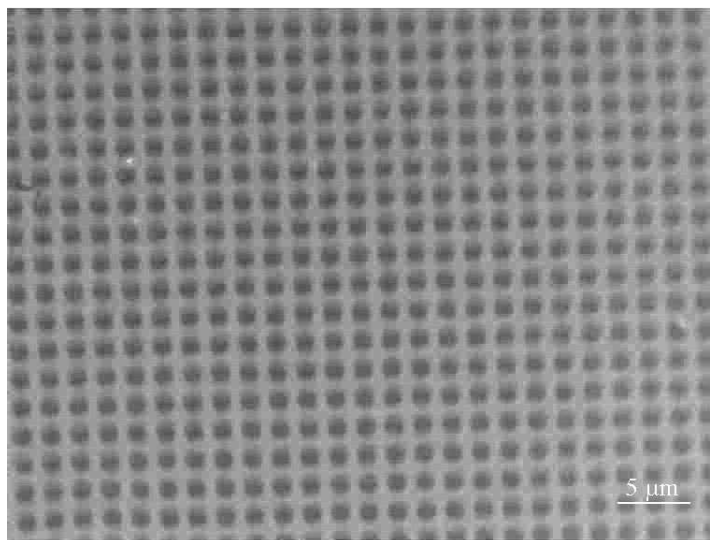


FIG. 3.7 – Image Nomarski de la mire obtenue

Un échantillon étalon présentant une absorption uniforme suffisamment élevée pour être mesurée au spectrophotomètre a été réalisé suivant le même procédé. Il est constitué d'un substrat nu de silice (sans masque) et a été placé en même temps que l'échantillon précédent dans l'implanteur. Nous obtenons ainsi deux échantillons fabriqués avec exactement les mêmes conditions expérimentales : substrats identiques, couches de même nature et même épaisseur, réalisées suivant le même procédé et simultanément. Nous pouvons donc affirmer que leurs absorptions sont identiques. La mesure au spectrophotomètre de l'étalon donne une absorption de 4000 ppm à la longueur d'onde  $1,06\text{ }\mu\text{m}$ . Ceci correspond donc à l'absorption des zones implantées de la mire.

Pour tester la résolution du microscope photothermique, il ne reste alors plus qu'à mesurer l'absorption de la mire grâce à ce dispositif. Nous avons réalisé une cartographie d'une zone de  $7,5\text{ }\mu\text{m} \times 7,5\text{ }\mu\text{m}$  ( $25 \times 25$  points avec un pas de  $0,3\text{ }\mu\text{m}$ ). Nous obtenons alors les résultats représentés figure 3.8.

Plusieurs remarques peuvent être faites concernant ce résultat. Tout d'abord, on reconnaît le motif de la mire : on observe des défauts absorbants de  $1\text{ }\mu\text{m}$  de diamètre, distants entre eux de  $1\text{ }\mu\text{m}$  et parfaitement résolus. Ceci prouve donc que la résolution du microscope est au moins de  $1\text{ }\mu\text{m}$ , sur des défauts non isolés. Nous pourrions donc détecter des défauts de taille bien inférieure s'ils sont isolés.

Une deuxième remarque concerne le contraste suivant la direction du déplacement de l'échantillon. Nous observons sur la figure 3.8 que le contraste est

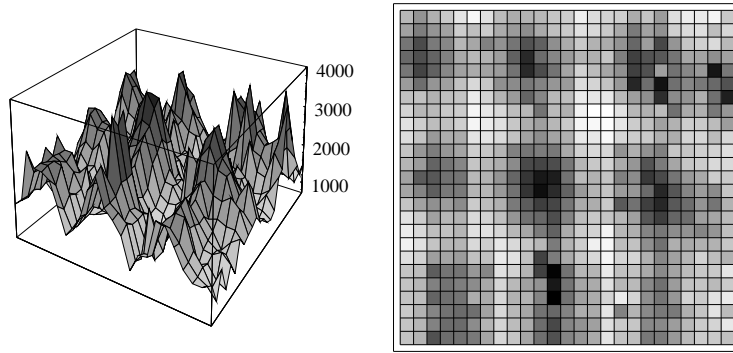


FIG. 3.8 – Cartographie d'absorption de la mire obtenue ; conditions expérimentales : diamètre du faisceau pompe =  $1\ \mu\text{m}$ , pas d'échantillonnage =  $0,3\ \mu\text{m}$ , zone cartographiée =  $7,5\ \mu\text{m} \times 7,5\ \mu\text{m}$

meilleur dans la direction horizontale que dans la direction verticale (direction de déplacement de l'échantillon). Ceci est probablement dû au fait que le pas d'échantillonnage est plus petit que le diamètre du faisceau pompe. Pour chaque pixel dans la direction verticale, une grande partie de la zone illuminée l'était déjà durant la mesure du pixel précédent. Si l'illumination "modifie" la mire (accroissement partiellement réversible du signal photothermique), le signal photothermique augmente et la zone illuminée peut garder en mémoire cette augmentation. Ce n'est pas le cas dans la direction horizontale car entre les mesures de 2 pixels adjacents plusieurs secondes sans illumination se produisent et la valeur initiale du signal photothermique est retrouvée.

Enfin, nous observons que dans les zones les moins absorbantes, c'est à dire recouvertes du film de carbone pendant l'implantation ionique, l'absorption est loin d'être négligeable, et est beaucoup plus élevée que l'absorption d'un substrat nu de silice. Ceci peut être dû d'une part à des effets d'ombrage si la grille masque posée sur le substrat de silice n'est pas parfaitement plane : des ions titane ont alors pu être implantés sous le film de carbone. D'autre part, il est possible que le film de carbone n'empêche pas l'implantation de la totalité des ions. Les zones situées sous le film de carbone ne sont donc pas constituées du substrat nu de silice mais d'une couche de silice légèrement implantée d'ions Titane donc absorbante.

#### 3.3.5 Exemple d'application à l'imagerie haute résolution

Nous nous proposons ici d'utiliser le microscope photothermique comme un dispositif d'imagerie haute résolution. Ce dispositif doit permettre d'analyser des variations relatives d'absorption induites par des irradiations laser dans un milieu inhomogène silice/or. Ce travail fait l'objet d'une collaboration avec le CEA Ile de France. La caractérisation par microscopie photothermique s'inscrit ici dans le cadre plus général d'une étude sur les mécanismes initiateurs de l'endommagement.

### CHAPITRE 3. RÉALISATION D'UN DISPOSITIF COUPLÉ DE MICROSCOPIE PHOTOTHERMIQUE ET D'ENDOMMAGEMENT LASER

ment laser. Cette étude rassemble plusieurs laboratoires : le CEA Ile de France, le CEA/CESTA, l'Argonne National Laboratory et le LASIM. Nous ne présentons pas ici l'étude dans son ensemble mais donnons juste un exemple d'application du dispositif de microscopie photothermique.

#### Nature des échantillons étudiés

Les échantillons étudiés ici ont été fabriqués par le LASIM dans le but de simuler des nano-défauts absorbants dans de la silice. Le procédé de fabrication est détaillé dans la référence [105].

Ces échantillons sont constitués d'une couche de silice d'épaisseur 130 nm sur laquelle sont déposés des agrégats d'or. Le tout est recouvert d'une couche de silice d'épaisseur 130 nm.

Les micrographies obtenues par microscopie électronique à transmission (figure 3.9) montrent que les particules sont globalement sphériques et réparties de manière aléatoire dans la matrice. Ces micrographies permettent également d'évaluer la distribution de taille des agrégats dans l'échantillon. Dans le cas des échantillons étudiés, les agrégats d'or ont des diamètres de l'ordre de 2 à 4 nm et des densités de 10 agrégats par  $\mu\text{m}^2$ .

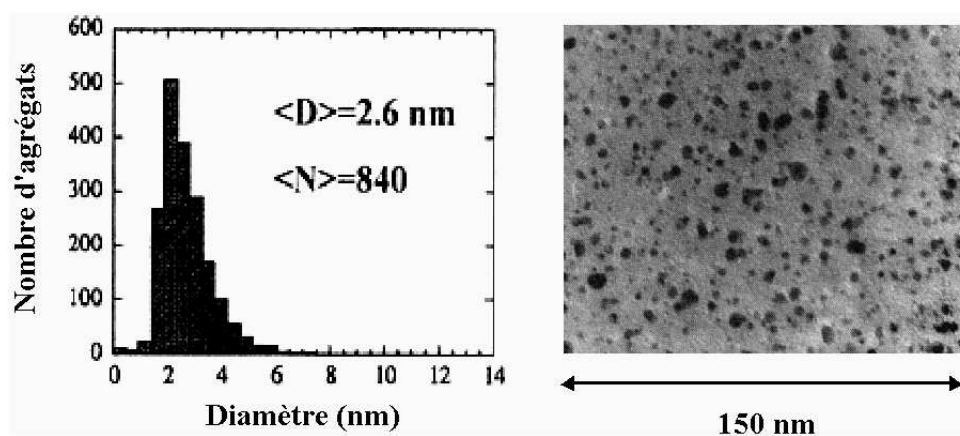


FIG. 3.9 – Image de microscopie électronique en transmission avec la distribution des tailles correspondante.  $\langle D \rangle$  est le diamètre moyen et  $\langle N \rangle$  le nombre moyen d'atomes par agrégat (image tirée de [105])

Ces échantillons ont subi diverses irradiations et caractérisations à l'Argonne National Laboratory. Elles sont détaillées dans la référence [106]. Suivant les densités d'énergie mises en jeu, ces irradiations ont eu pour conséquence l'apparition de cratères (zone englobant le zoom 2 sur la figure 3.10), d'écaillages (zoom 1), ou aucune modification de la surface (zoom 4). Certaines zones n'ont pas été soumises à l'irradiation (zoom 3).

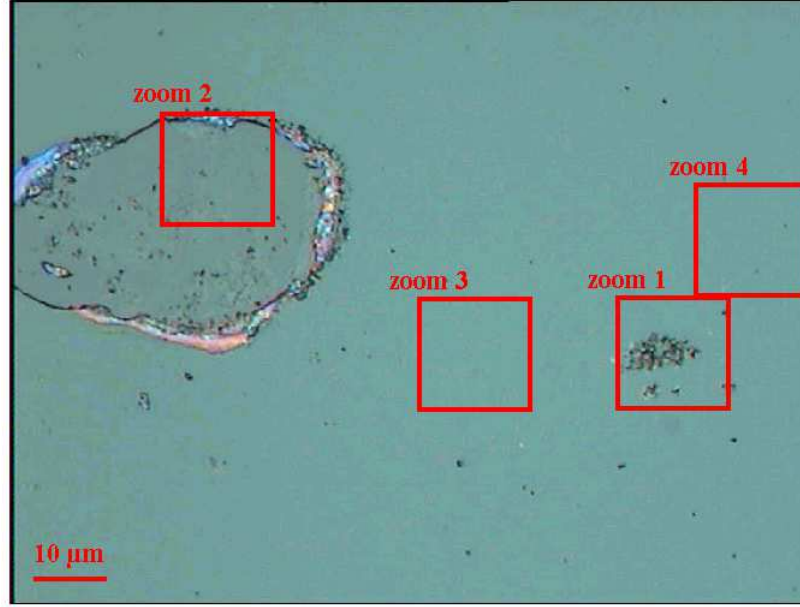


FIG. 3.10 – Image Nomarski de la zone de l'échantillon étudiée

Nous nous proposons ici d'imager les variations d'absorption induites par les irradiations laser sur le milieu inhomogène silice/or.

La difficulté rencontrée ici est liée au niveau d'absorption d'un tel milieu et à sa dépendance en fonction de la longueur d'onde. Dans un premier temps nous avons donc calculé l'absorption d'un milieu inhomogène constitué d'inclusions métalliques dans une matrice diélectrique.

### Absorption d'un milieu inhomogène

Pour estimer le niveau d'absorption du milieu inhomogène silice/or, nous avons calculé le coefficient d'extinction de ce milieu, considéré comme un milieu effectif [107]. Dans l'hypothèse d'une faible porosité et de particules sphériques, la loi de Bruggeman sur les milieux effectifs s'applique. Elle s'écrit :

$$f \frac{\epsilon_M - \epsilon_{eff}}{\epsilon_M + 2\epsilon_{eff}} + (1 - f) \frac{\epsilon_D - \epsilon_{eff}}{\epsilon_D + 2\epsilon_{eff}} = 0 \quad (3.10)$$

Où :

- $\epsilon_{eff}$  est la fonction diélectrique du milieu effectif
- $\epsilon_M$  est la fonction diélectrique du métal sous forme d'inclusions
- $\epsilon_D$  est la fonction diélectrique de la matrice diélectrique
- $f$  est la fraction volumique de métal dans la matrice diélectrique



### CHAPITRE 3. RÉALISATION D'UN DISPOSITIF COUPLÉ DE MICROSCOPIE PHOTOTHERMIQUE ET D'ENDOMMAGEMENT LASER

Pour calculer la fonction diélectrique du métal, nous choisissons, en première approximation, le modèle simple de Drude :

$$\epsilon_M(E) = 1 - \frac{E_p^2}{(E^2 - jEE_\tau)} \quad (3.11)$$

Avec :

- $E_p$  énergie de plasmon du métal
- $E_\tau$  énergie de relaxation du métal

La fonction diélectrique de la matrice diélectrique est calculée en utilisant le modèle des oscillateurs harmoniques :

$$\epsilon_D(E) = 1 + \sum_{i=1}^5 \frac{A_i}{(E_i^2 - E^2) + j\gamma_i E} \quad (3.12)$$

Avec :

- $E = \frac{1.24}{\lambda}$  énergie en eV (et  $\lambda$  en  $\mu\text{m}$ )
- $E_i$  énergie de résonance des oscillateurs
- $A_i$  amplitude des oscillateurs
- $\gamma_i$  atténuation des oscillateurs

Pour notre application, le diélectrique considéré est la silice, le métal est l'or et la fraction volumique correspondant à nos conditions expérimentales est environ de  $10^{-3}$ . Les valeurs numériques sont prises dans [108]. L'indice de réfraction et le coefficient d'extinction du milieu effectif considéré sont alors représentés figure 3.11 :

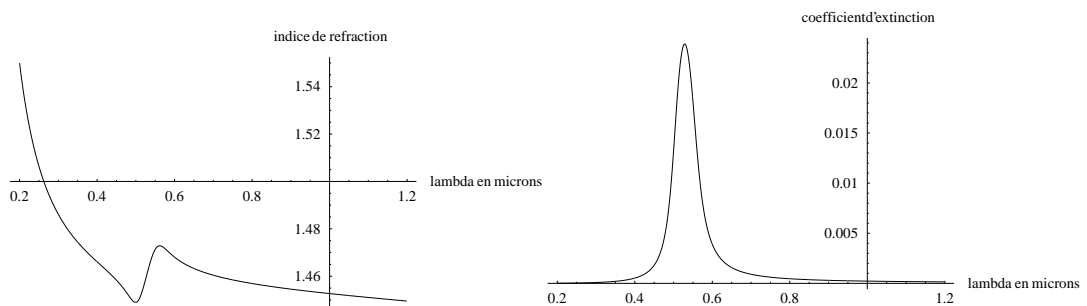


FIG. 3.11 – Indice de réfraction et coefficient d'extinction du milieu effectif silice + nano-particules d'or pour une fraction volumique d'or de  $10^{-3}$

La bande d'absorption de l'or est attribuée à des modes d'oscillations plasmon des électrons de conduction dans les inclusions métalliques, modes couplés au champ électromagnétique appliqué.

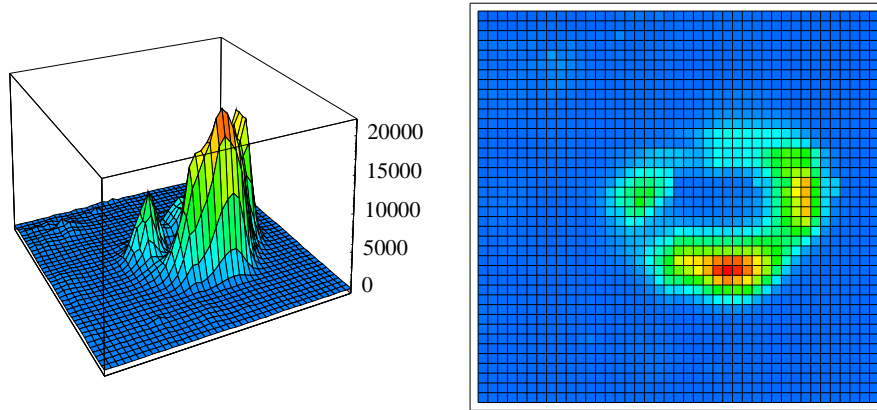
La bande d'absorption est située dans le visible, aux alentours de 530 nm. On note que l'absorption résiduelle à 1,06  $\mu\text{m}$  est très faible, car loin de la bande d'absorption. C'est pourquoi nous avons tout d'abord tenté d'étudier cet échantillon grâce au dispositif de photothermie classique, décrit au chapitre 2, avec un laser pompe Argon de longueur d'onde 514 nm.

#### Résultats obtenus grâce au dispositif de photothermie classique

Nous cherchons tout d'abord à mesurer l'absorption au niveau du cratère englobant le zoom 2. Les mesures sont réalisées dans les conditions suivantes :

- diamètre du faisceau pompe = 3  $\mu\text{m}$
- pas d'échantillonnage = 3  $\mu\text{m}$
- nombre de points = 41 x 41
- $\Rightarrow$  zone cartographiée = 120  $\mu\text{m}$  x 120  $\mu\text{m}$

Les résultats obtenus sont présentés figure 3.12.



$$A_{max} = 21\,541 \text{ ppm} ; A_{min} = 67 \text{ ppm} ; A_{moy} = 1253 \text{ ppm} ; \sigma = 3085 \text{ ppm}$$

FIG. 3.12 – Absorption à 514 nm d'une zone contenant le cratère observé figure 3.10; conditions expérimentales : diamètre du faisceau pompe = 3  $\mu\text{m}$ , pas d'échantillonnage = 3  $\mu\text{m}$ , zone cartographiée = 120  $\mu\text{m}$  x 120  $\mu\text{m}$

Tout d'abord, nous retrouvons l'allure générale du cratère observé figure 3.10 et ses dimensions sont identiques. Nous observons également que les 3 zones d'absorption maximales repérées en photothermie correspondent aux zones où la couche de silice endommagée paraît faire un bourrelet sur l'image au microscope Nomarski (figure 3.10).

Nous avons vu au chapitre 2 qu'il est rare d'avoir une corrélation entre les cartographies d'absorption et de diffusion. Ces dernières se rapprochant généralement des mesures par AFM ou microscopie Nomarski [109], il peut paraître

### CHAPITRE 3. RÉALISATION D'UN DISPOSITIF COUPLÉ DE MICROSCOPIE PHOTOTHERMIQUE ET D'ENDOMMAGEMENT LASER

---

surprenant d'obtenir une forte ressemblance entre la mesure photothermique présentée figure 3.12 et le cratère observé au microscope Nomarski figure 3.10.

Par ailleurs, ces zones sont considérablement élargies du fait de la convolution avec le faisceau pompe et il paraît impossible d'étudier ainsi avec précision l'intérieur du cratère ou un écaillage comme celui représenté sur le zoom 1 de la figure 3.10.

Nous avons donc choisi d'étudier en détail ces échantillons grâce au microscope photothermique, même si la longueur d'onde du laser pompe ( $1,06\text{ }\mu\text{m}$ ) n'est pas optimale pour ce genre d'échantillons.

#### Résultats obtenus grâce au dispositif de microscopie photothermique

Nous nous sommes tout d'abord attachés à l'étude de la zone définie par le zoom 1. Des images au microscope Nomarski et au microscope à force atomique (AFM [110]) ont tout d'abord été réalisées avant d'effectuer les mesures sur le microscope photothermique. Les conditions expérimentales de ces mesures sont les suivantes :

- diamètre du faisceau pompe =  $1\text{ }\mu\text{m}$
- pas d'échantillonnage =  $1\text{ }\mu\text{m}$
- nombre de points =  $21 \times 21$
- $\Rightarrow$  zone cartographiée =  $20\text{ }\mu\text{m} \times 20\text{ }\mu\text{m}$

Pour les raisons déjà évoquées, nous n'établirons pas les cartographies. Nous considérons ici le microscope photothermique comme un dispositif d'imagerie haute résolution fournissant des variations relatives d'absorption et de propriétés thermiques.

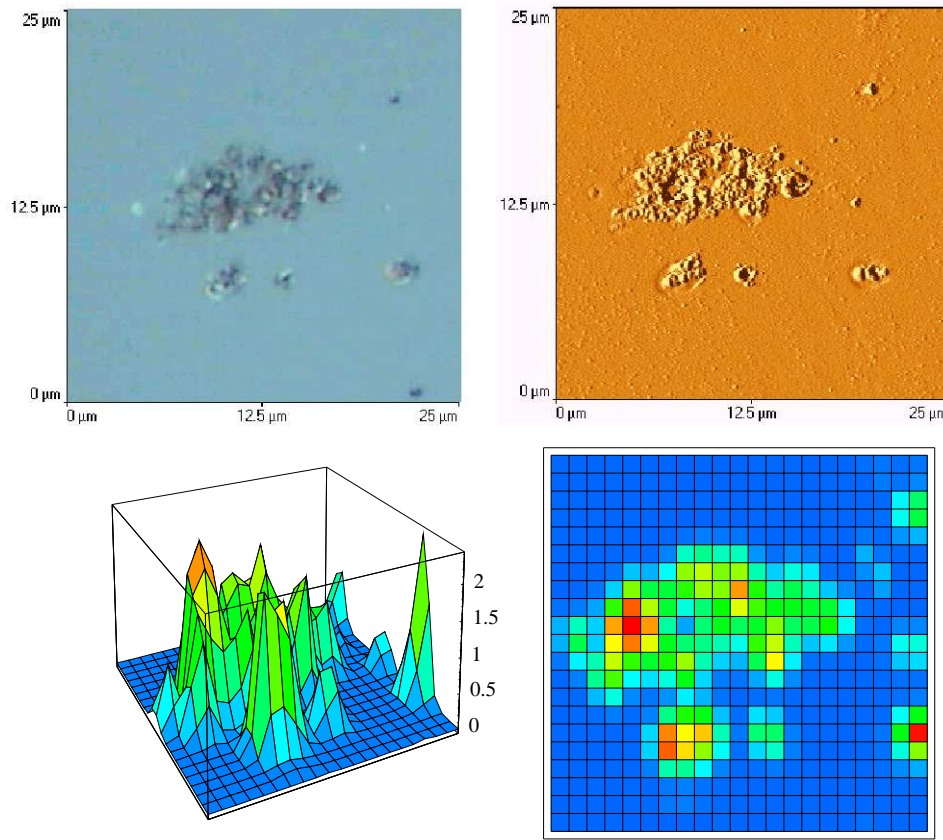
Pour avoir une référence de comparaison pour ces cartographies, nous avons réalisé des mesures de bruit dans les conditions exactes des expériences, avec l'échantillon présent, mais le faisceau pompe occulté. Nous obtenons alors les résultats suivants, exprimés en unité arbitraire (U.A.), pour ces cartographies de bruit :

- Valeur maximale du bruit :  $\text{Max} = 1,5.10^{-3}$
- Valeur minimale du bruit :  $\text{Min} = 1,5.10^{-5}$
- Valeur moyenne du bruit :  $\text{Moy} = 4,77.10^{-4}$
- Ecart type du bruit :  $\sigma = 2,6.10^{-4}$

Les résultats des mesures du zoom 1 réalisées au microscope Nomarski, à l'AFM et au microscope photothermique sont représentés figure 3.13.

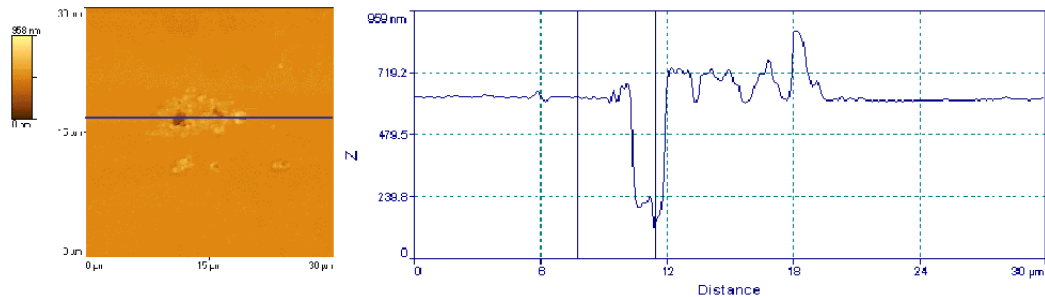
La concordance de ces trois résultats est remarquable et n'était pas évidente a priori. La ressemblance entre les mesures Nomarski et AFM s'explique par le fait que le défaut observé est un écaillage. La variation de profil de la surface est donc visible à la fois au microscope Nomarski (mesure effectuée avec un objectif x 100) et à l'AFM. Une information supplémentaire est apportée ici par la mi-

### 3.3. MICROSCOPE PHOTOTHERMIQUE



Max = 2,37 ; Min = 0 ; Moy = 0,28 ;  $\sigma = 0,49$  (U.A.)

a. Zoom 1 réalisé au microscope Nomarski avec un objectif x 100 (en haut à gauche), à l'AFM (en haut à droite) et au microscope photothermique (en bas) dans les conditions suivantes : diamètre du faisceau pompe = pas d'échantillonnage =  $1\ \mu\text{m}$ , zone cartographiée =  $20\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$



b. Profil de la surface du zoom 1 réalisé à l'AFM

FIG. 3.13 – a. et b. : zoom 1 observé grâce à différentes techniques

### CHAPITRE 3. RÉALISATION D'UN DISPOSITIF COUPLÉ DE MICROSCOPIE PHOTOTHERMIQUE ET D'ENDOMMAGEMENT LASER

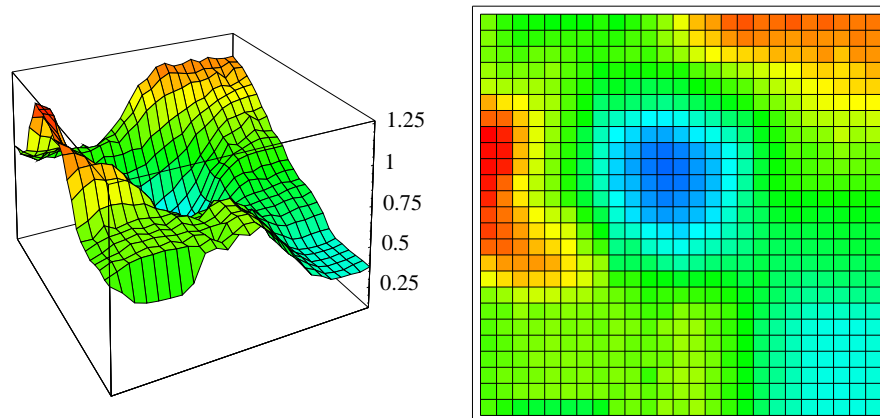
croscopie photothermique : cette variation de profil est associée à un changement de propriétés du matériau silice/or, observée via le microscope photothermique.

De plus la résolution du microscope photothermique est également vérifiée : les plus petits défauts visibles en microscopie Nomarski et AFM le sont également en microscopie photothermique.

Une mesure du profil de la surface du zoom 1 réalisée à l'AFM (figure 3.13) met en évidence la présence d'un trou dans la couche silice/or. Le diamètre de ce trou est de l'ordre de  $1\text{ }\mu\text{m}$ . Ce trou semble également s'accompagner d'une diminution de l'absorption, représentée par le pixel de faible niveau d'absorption au centre du défaut mesuré en microscopie photothermique. Pour vérifier cette information, nous avons réalisé grâce au microscope photothermique un zoom centré sur ce pixel dans les conditions expérimentales suivantes :

- diamètre du faisceau pompe =  $1\text{ }\mu\text{m}$
- pas d'échantillonnage =  $0,2\text{ }\mu\text{m}$
- nombre de points =  $25 \times 25$
- $\Rightarrow$  zone cartographiée =  $5\text{ }\mu\text{m} \times 5\text{ }\mu\text{m}$

Les résultats sont présentés figure 3.14.



$$\text{Max} = 1,23; \text{Min} = 0,15; \text{Moy} = 0,67; \sigma = 0,23 \text{ (U.A.)}$$

FIG. 3.14 – Détail du zoom 1 réalisé au microscope photothermique ; conditions expérimentales : diamètre du faisceau pompe =  $1\text{ }\mu\text{m}$ , pas d'échantillonnage =  $0,2\text{ }\mu\text{m}$ , zone cartographiée =  $5\text{ }\mu\text{m} \times 5\text{ }\mu\text{m}$

Nous vérifions donc bien que le pixel de faible niveau d'absorption au centre du défaut sur la figure 3.13 n'est pas un artefact de mesure. En effet, on retrouve sur la cartographie de la figure 3.14 une zone de diamètre de l'ordre de  $1\text{ }\mu\text{m}$  et d'absorption beaucoup plus faible que le reste de la cartographie. Cette cartographie illustre bien, autant en termes de résolution que de précision de positionnement les performances du microscope photothermique.

Nous avons poursuivi l'étude de manière à comparer les niveaux d'absorption à l'intérieur du cratère (zoom 2), dans une zone non irradiée (zoom 3) ainsi que dans une zone où l'irradiation n'a pas modifié l'état de surface (zoom 4). Les conditions expérimentales sont les mêmes que pour la cartographie photothermique présentée figure 3.13.

Les résultats sont regroupés figure 3.15.

Ces cartographies sont similaires. Les valeurs maximales, moyennes et écarts types sont du même ordre de grandeur pour les trois cartographies. De plus, ces cartographies mettent en évidence, pour toutes les zones mesurées, la présence de polluants absorbants non détectés en microscopie optique. Ces polluants sont probablement dus à des retombées de matière après endommagement ou bien à une contamination de l'échantillon due aux multiples manipulations dans les différents laboratoires.

Pour pouvoir comparer les 3 cartographies, nous avons mesuré la valeur moyenne et l'écart type du signal dans les zones exemptes de défauts absorbants. Ces résultats, regroupés dans le tableau 3.6, montrent que les 3 cartographies sont également similaires dans les zones exemptes de défauts.

	Zoom 2	Zoom 3	Zoom 4
moyenne	$8,6.10^{-4}$	$8,1.10^{-4}$	$8,7.10^{-4}$
écart type	$3,7.10^{-4}$	$3,8.10^{-4}$	$4,5.10^{-4}$

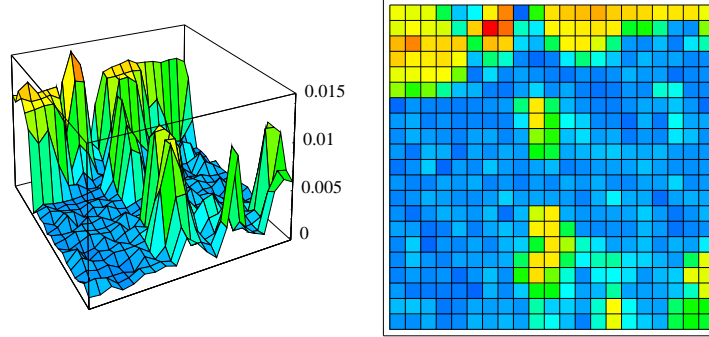
TAB. 3.6 – Valeurs moyennes et écarts types du signal dans les zones exemptes de défauts absorbants

Par ailleurs, on peut noter que ces valeurs sont très proches de celles du bruit. On atteint donc ici la limite de détectivité du dispositif, puisque, comme il a été montré au paragraphe "Absorption d'un milieu inhomogène", les échantillons constitués d'agrégats d'or recouverts de silice sont absorbants dans le visible et non pas à la longueur d'onde du laser pompe. Ceci met donc en évidence que dans le cas de zones absorbantes (zoom 1), les propriétés du matériau ne sont plus celles du matériau initial constitué d'agrégats d'or recouverts de silice.

CHAPITRE 3. RÉALISATION D'UN DISPOSITIF COUPLÉ DE  
MICROSCOPIE PHOTOTHERMIQUE ET D'ENDOMMAGEMENT LASER

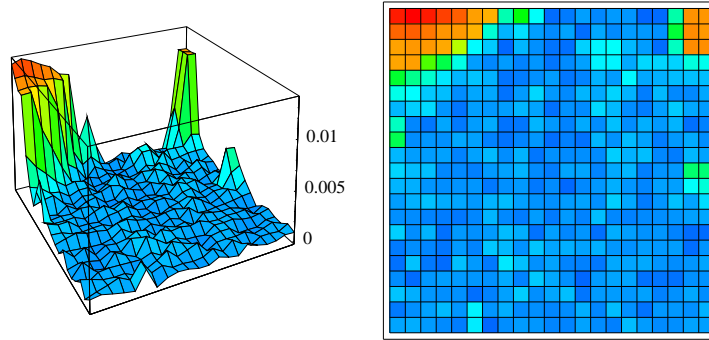
---

Zoom 2



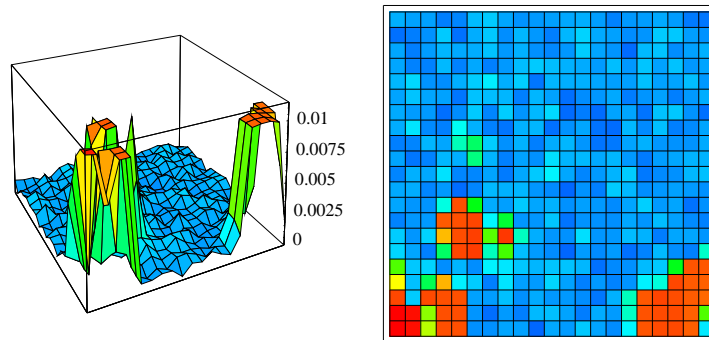
Max =  $1,46 \cdot 10^{-2}$ ; Min =  $8,2 \cdot 10^{-5}$ ; Moy =  $3 \cdot 10^{-3}$ ;  $\sigma = 3,6 \cdot 10^{-3}$  (U.A.)

Zoom 3



Max =  $1,4 \cdot 10^{-2}$ ; Min =  $6,6 \cdot 10^{-5}$ ; Moy =  $1,6 \cdot 10^{-3}$ ;  $\sigma = 2,6 \cdot 10^{-3}$  (U.A.)

Zoom 4



Max =  $1,1 \cdot 10^{-2}$ ; Min =  $1,3 \cdot 10^{-4}$ ; Moy =  $1,9 \cdot 10^{-3}$ ;  $\sigma = 2,8 \cdot 10^{-3}$  (U.A.)

FIG. 3.15 – Zoom 2, 3 et 4 réalisés au microscope photothermique; conditions expérimentales : diamètre du faisceau pompe = pas d'échantillonnage =  $1 \mu\text{m}$ , zone cartographiée =  $20 \mu\text{m} \times 20 \mu\text{m}$

Cette première partie du chapitre a été consacrée à la réalisation expérimentale et à la validation d'un dispositif de microscopie basé sur la déflexion photothermique. Un diamètre de faisceau pompe de  $1\ \mu\text{m}$  est obtenu par focalisation grâce à un objectif de microscope. Dans cette configuration, une résolution meilleure que  $1\ \mu\text{m}$  a été démontré sur des mires absorbantes spécialement conçues. Cependant, l'étalonnage de l'absorption absolue est difficile. Le microscope photothermique a été appliqué à l'imagerie haute résolution de variations relatives d'absorption. Ses performances en terme de résolution et de précision de positionnement ont également pu être mises en évidence.

Dans le but d'étudier l'évolution des nano-défauts absorbants avec l'irradiation laser, le microscope photothermique est couplé à un dispositif de test d'endommagement laser à la même longueur d'onde. Ce dispositif est présenté dans la partie suivante.

## 3.4 Dispositif de test d'endommagement laser

Le dispositif de test d'endommagement laser, couplé au microscope photothermique, doit permettre de corréler l'absorption à la tenue au flux, en dessous et au seuil d'endommagement, de manière à pouvoir étudier les phénomènes initiateurs de l'endommagement laser.

Le schéma du dispositif du microscope photothermique couplé au banc d'endommagement laser est décrit figure 3.16.

Les seuils d'endommagement laser obtenus en fonction des conditions expérimentales sont très divers et les comparaisons inter-laboratoires difficiles [111,112]. En effet, le seuil d'endommagement dépend de nombreux paramètres du faisceau incident tels que longueur d'onde, profil spatial, profil temporel, taille du spot, ainsi que du critère d'endommagement choisi [113]. Ces aspects sont largement décrits dans la thèse de L. Gallais [79].

Nous avons vu dans le chapitre 2 l'importance de la longueur d'onde sur la mesure de l'absorption des défauts. En particulier il est apparu primordial de réaliser les tests d'endommagement à la même longueur d'onde que les mesures d'absorption.

La source utilisée ici est donc un laser Nd :YAG, tout comme le laser pompe du microscope photothermique, mais impulsionnel. Un dispositif de visualisation par camera CCD permet à la fois de positionner le spot à un endroit choisi de l'échantillon et de détecter les endommagements.



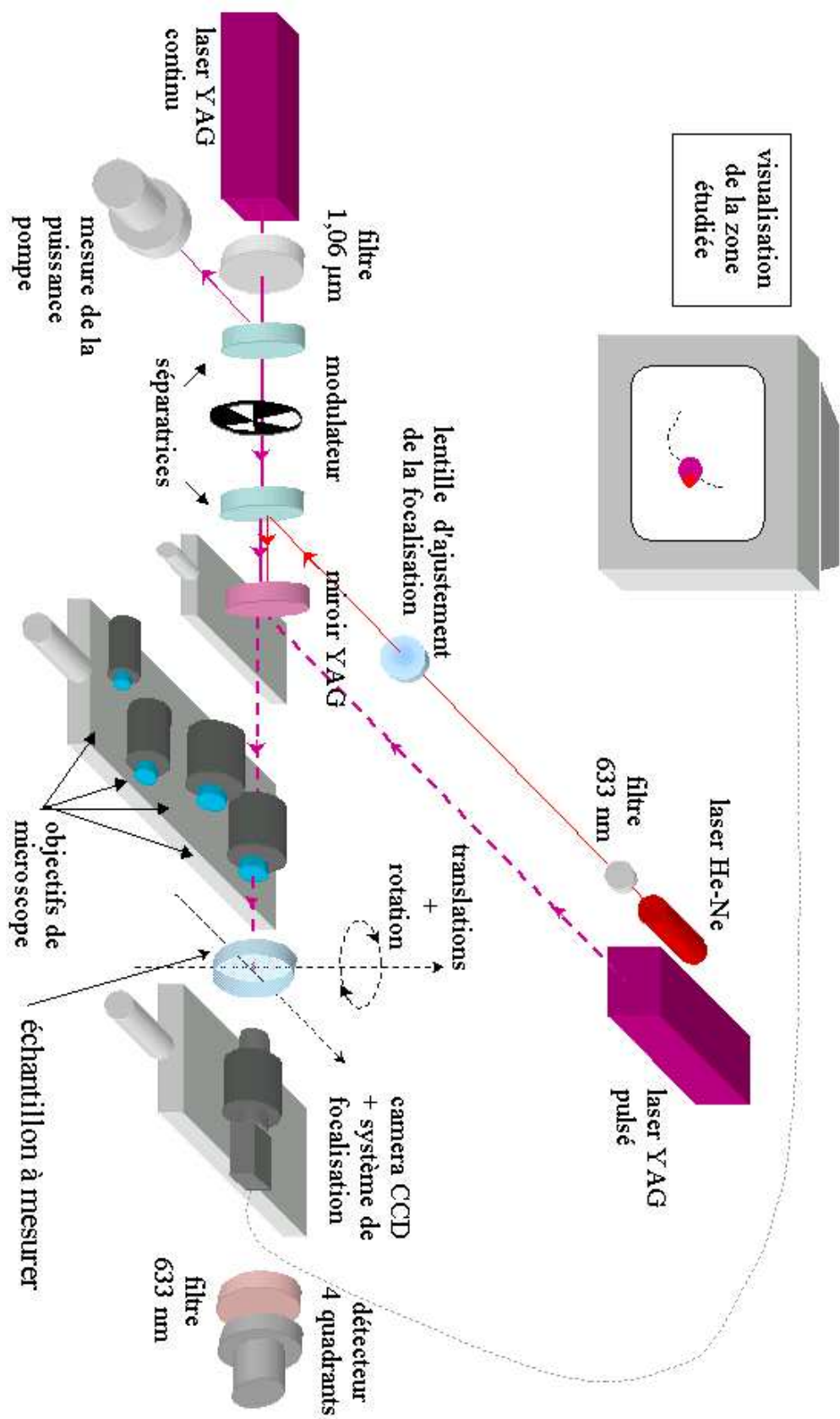


FIG. 3.16 – Schéma du dispositif expérimental

### 3.4.1 Le laser source

Les spécifications du laser Nd :YAG impulsif utilisé sont données dans le tableau 3.7.

longueur d'onde	1064 nm
durée de l'impulsion	7 ns
fréquence de répétition	1 à 20 Hz
énergie/puissance	50 mJ
polarisation	verticale

TAB. 3.7 – Spécifications du laser pulsé Nd :YAG

### Mesure de l'énergie

La mesure de l'énergie est réalisée grâce à un détecteur pyroélectrique. Ses caractéristiques sont écrites dans le tableau 3.8.

réponse spectrale	0,19 à 10,6 $\mu\text{m}$
précision	5 %
énergie maximale mesurable	3 mJ
énergie minimale mesurable	5 $\mu\text{J}$
seuil d'endommagement	10 mJ/cm <sup>2</sup>

TAB. 3.8 – Spécifications du laser pulsé Nd :YAG

Le fonctionnement de ce type de détecteur, basé sur la variation de la polarisation électrique du BaTiO<sub>3</sub> avec la température, permet des temps de réponse bien plus courts que les détecteurs thermiques ordinaires : le temps de montée est inférieur au dixième de milliseconde. Il est donc possible de mesurer avec précision l'énergie de chaque tir.

Un contrôle des valeurs fournies par le détecteur pyroélectrique est réalisé grâce à un calorimètre, qui réalise la moyenne de la puissance sur plusieurs tirs.

L'énergie a été mesurée en sortie du laser. Nous obtenons  $E = 46,7$  mJ, ce qui est très satisfaisant compte tenu des spécifications du laser. Pour tenir compte des pertes sur le trajet du faisceau, et connaître l'énergie réelle vue par l'échantillon, l'énergie a également été mesurée en plaçant le détecteur sur le porte-échantillon. Nous obtenons alors seulement  $E = 12,1$  mJ. L'ensemble miroir / objectif de focalisation transmet donc seulement 26 % de l'énergie incidente.

La stabilité en énergie du laser a été déterminée expérimentalement sur une série de 1000 tirs. A 1Hz, on obtient une moyenne de la variation d'énergie égale à 0,94 %, et un écart type égal à 0,73 %.

### Profil temporel

La durée de l'impulsion doit être connue avec précision afin de pouvoir effectuer des comparaisons entre les différents bancs de tests. De plus, la résolution doit être suffisante pour détecter la présence éventuelle de pics temporels dans le faisceau (figure 3.17). Les mesures de l'impulsion laser sont effectuées avec un oscilloscope 500 MHz et une photodiode à avalanche de temps de montée inférieur à 100 ps.

Profil temporel d'un tir

Profil moyenné sur 100 tirs

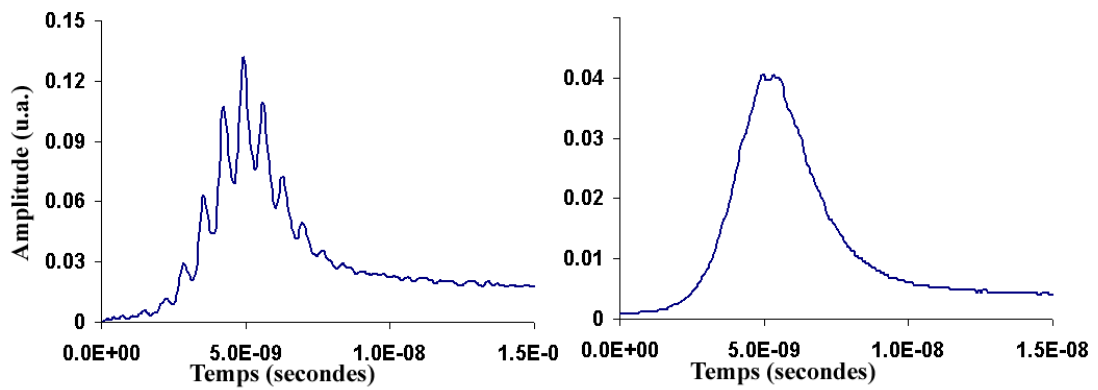


FIG. 3.17 – Profil temporel du faisceau

### Profil spatial

Le faisceau est focalisé sur la surface de l'échantillon grâce à un objectif de focalisation de focale 14,5 mm.

Dans ces conditions, le diamètre de waist à  $1/e^2$  du laser focalisé est de l'ordre de 12  $\mu\text{m}$ . Son profil spatial est représenté figure 3.18

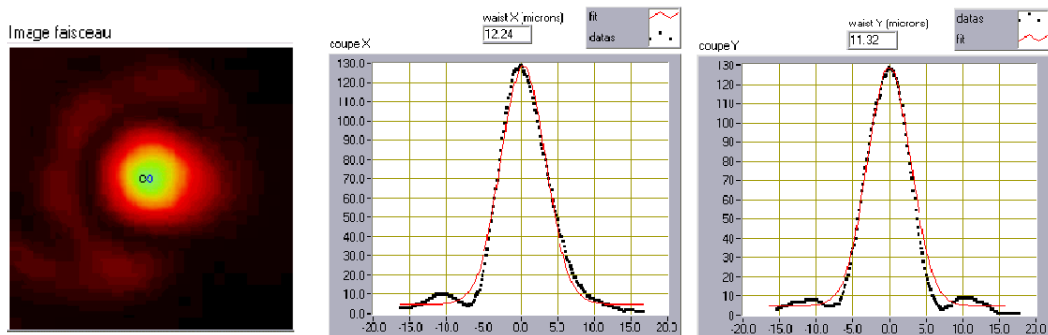


FIG. 3.18 – Profil spatial du faisceau

### 3.4.2 Système d'imagerie

Un système d'imagerie est indispensable à la fois pour mesurer avec précision les paramètres du profil spatial et pour positionner les 2 faisceaux Nd :YAG (continu et pulsé) exactement au même endroit sur l'échantillon de manière à corréliser les mesures photothermiques avant et après tir.

Le système d'imagerie mis au point est constitué d'un objectif de microscope associé à une bague allonge et à une camera CCD, comme présenté sur la photo de la figure 3.19. Le système est placé derrière l'échantillon et réalise l'image de sa face avant. Deux objectifs à longue distance de travail (x 20 et x 50) peuvent être utilisés suivant la taille du champ désirée. La résolution obtenue sur l'image avec le plus fort grossissement est de 6 pixels pour 1 micron. Une carte vidéo permet d'acquérir ces images, de les stocker et de les analyser.

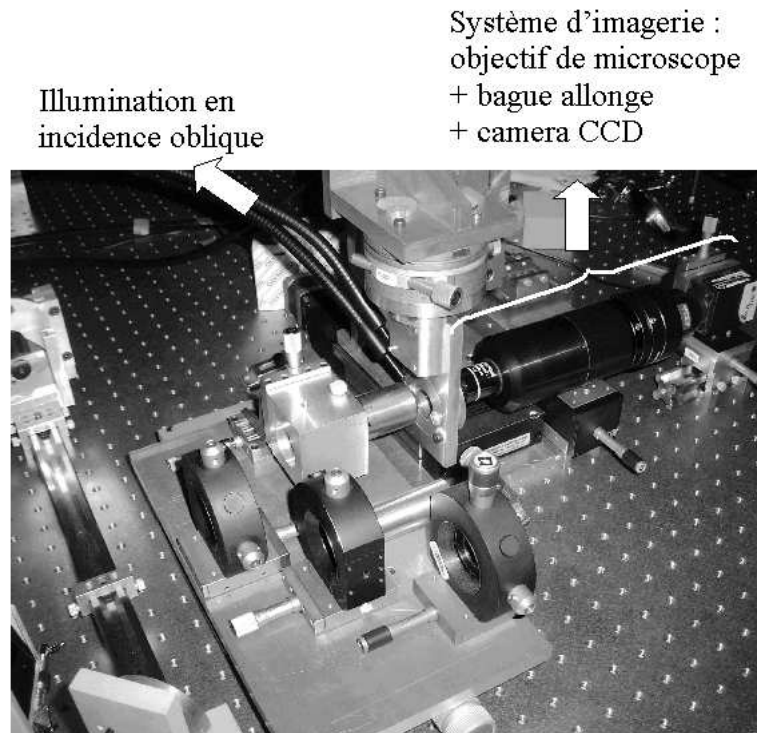


FIG. 3.19 – Système d'imagerie

Les objectifs à longue distance de travail utilisés permettent de réaliser une observation à une distance objectif/objet de plus de 1 cm. L'observation se fait en mode fond noir : la surface de l'échantillon est éclairée en incidence oblique et l'image est formée à partir des rayons diffusés. Ce système permet la détection de défauts isolés diffusants.

Ce système n'est pas à proprement parler un système de microscopie car la qualité des images obtenues ne permet pas leur exploitation. Cependant, ce

système est parfaitement adapté au repositionnement des différents faisceaux, focalisés avec différents objectifs. Nous verrons par la suite qu'il permet de repositionner les faisceaux sur des défauts dont le diamètre est de l'ordre de 600 nm.

### **3.4.3 Détection d'endommagement**

L'endommagement est défini comme étant une modification physique irréversible du matériau, détectable par l'utilisateur [114, 115]. La définition du critère d'endommagement réside donc dans la détection de l'endommagement. C'est la difficulté majeure de la réalisation d'un dispositif de test d'endommagement laser.

Les principales techniques de détection classiquement utilisées sont les suivantes [79] :

- mesure des variations de la diffusion d'un laser sonde
- détection d'un signal acoustique
- mesure de variations de transmission à travers l'échantillon
- détection par microscopie optique

Nous avons choisi cette dernière technique, qui consiste à observer in-situ l'échantillon et à comparer son état avant et après tir. Cette technique est la plus adaptée à notre dispositif, d'une part parce qu'elle permet de détecter l'apparition d'endommagements avec une grande sensibilité, d'autre part parce que nous avons besoin d'imager la surface de l'échantillon pour comparer les mesures photothermiques avant et après tir.

### **3.4.4 Détermination de la densité d'énergie**

La détermination précise de la densité d'énergie maximale vue par l'échantillon au cours d'une irradiation n'est pas immédiate.

Dans le cas idéal d'un faisceau gaussien, la densité d'énergie maximale  $F$  est le rapport de l'énergie incidente  $E$  (mesurée grâce au détecteur pyroélectrique) sur la surface de la section de la gaussienne à  $1/e$  :

$$F = \frac{E}{\pi r^2} \quad (3.13)$$

où  $r$  est le rayon à  $1/e$  du faisceau d'irradiation.

Dans le cas réel, le faisceau n'est pas parfaitement gaussien (cf figure 3.18) et une partie non négligeable de l'énergie est contenue dans les pieds de la gaussienne. Pour résoudre ce problème, il faut considérer une surface effective prenant en compte la répartition réelle de l'énergie dans le plan de l'échantillon. Cette surface est déterminée en analysant l'image du faisceau.

Le calcul complet est détaillé dans la référence [79]. Les résultats montrent que dans notre cas, le rapport de la densité d'énergie calculée en considérant le faisceau gaussien sur la densité d'énergie réelle est 2,6.

Le dispositif de test d'endommagement laser permet l'irradiation in-situ de zones préalablement analysées par microscopie photothermique. Le positionnement du faisceau d'irradiation est contrôlé par une camera CCD et sa longueur d'onde est la même que celle du laser pompe du microscope.

Dans le cas d'apparition d'endommagement, il est possible de caractériser les zones endommagées en fonction de leur absorption. Dans le cas d'absence d'endommagement, il est possible de caractériser l'évolution de l'absorption des zones irradiées grâce à une seconde mesure photothermique. Les procédures expérimentales et leur optimisation sont présentées dans la partie suivante.

## 3.5 Procédure expérimentale

### 3.5.1 Différentes procédures

Les mesures d'endommagement, du fait de l'inhomogénéité des matériaux, sont le plus souvent des mesures statistiques. Classiquement, les procédures utilisées pour déterminer le seuil d'endommagement sont les procédures 1/1, R/1, ou S/1 [114,115].

La procédure 1/1 consiste à tirer une fois sur N sites à une énergie donnée et à répéter l'opération pour M énergies différentes.

La procédure S/1 consiste à tirer X fois sur le même site avec énergie donnée, et à répéter l'opération sur N sites différents, et M énergies différentes, tandis que la procédure R/1 consiste à tirer sur un site avec une rampe d'énergie jusqu'au claquage.

Ces différentes procédures sont représentées schématiquement sur la figure 3.20.

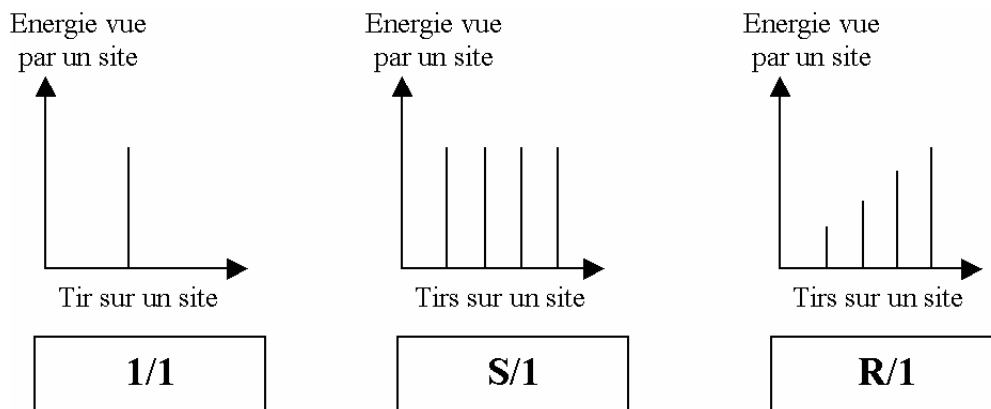


FIG. 3.20 – Schéma des différentes procédures de test d'endommagement

Le nombre de sites testés dépend de la procédure utilisée. Dans tous les cas, la probabilité d'endommagement à une énergie donnée est  $P = n/N$  où  $n$  est le nombre de sites endommagés. On peut alors tracer, pour un échantillon, la courbe de probabilité d'endommagements en fonction de la densité d'énergie. On définit le seuil bas de l'échantillon comme la densité d'énergie maximale pour laquelle il ne se produit jamais d'endommagement et le seuil haut comme la densité d'énergie minimale pour laquelle il se produit toujours un endommagement. Un exemple de courbe de probabilité d'endommagement obtenue grâce à la procédure 1/1 sur la face avant d'un substrat d'Herasil est donné figure 3.21.

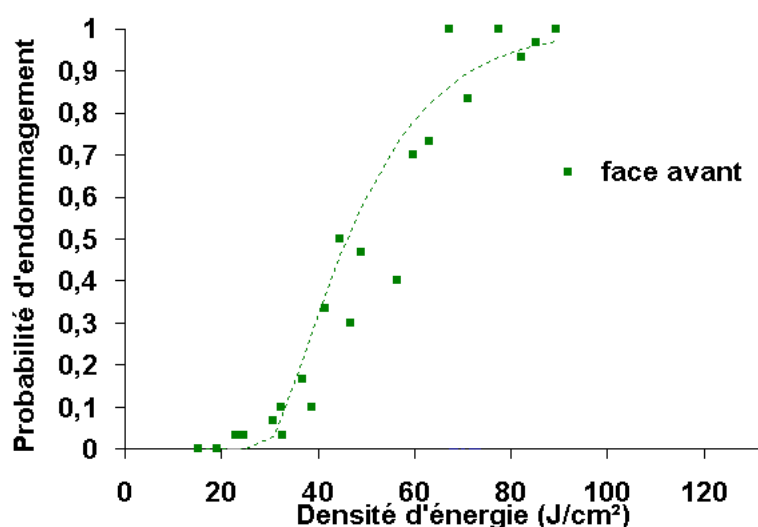


FIG. 3.21 – Courbe de probabilité d'endommagement obtenue à  $1,06 \mu\text{m}$ , grâce à la procédure 1/1 sur la face avant d'un substrat de BK7

De manière à comprendre les mécanismes qui entrent en jeu dans les processus d'endommagement liés à chacune de ces procédures, et à les relier à l'évolution de l'absorption du matériau, la procédure de microscopie photothermique avant/après tir est calquée sur les procédures 1/1, R/1 et S/1.

Dans le cas de la procédure 1/1, un site est donc mesuré par microscopie photothermique avant et après tir à une énergie donnée, puis l'opération est renouvelée sur un autre site et à une autre énergie. Dans le cas des procédures S/1 ou R/1, un site est mesuré en photothermie avant tir, et après chacun des  $X$  tirs.

Un soin particulier est apporté à l'étude des phénomènes observés avant endommagement. En effet, nous cherchons à étudier, en termes de modification de l'absorption du matériau, les phénomènes initiateurs de l'endommagement. Pour cela, des images de la surface de l'échantillon sont réalisées par microscopie à force atomique, de manière à détecter une éventuelle modification de l'état de surface de l'échantillon.

Les procédures expérimentales choisies sont délicates et longues. Dans le cas 1/1, deux changements d'objectif de focalisation donc deux repositionnements précis des faisceaux Nd :YAG sur un site déterminé de l'échantillon sont nécessaires. Cette opération est répétée X fois dans les cas S/1 et R/1, et X+1 cartographies photothermiques sont réalisées.

En pratique, pour que les expériences soient réalisables, la durée d'acquisition d'une cartographie photothermique ne doit pas dépasser quelques minutes. Nous présentons dans la partie suivante l'optimisation en détectivité et en temps qui a permis de réduire la durée des expériences.

#### 3.5.2 Optimisation des mesures photothermiques

Pour des raisons d'optimisation de la détectivité, les cartographies d'absorptions réalisées sur le banc de photothermie "classique", existant au laboratoire depuis 1990, sont faites dans les conditions suivantes :

- diamètre de faisceau pompe : 3 à 100  $\mu\text{m}$
- fréquence de modulation : 27 Hz. Le choix d'une basse fréquence de modulation permet l'obtention d'un signal élevé avec des faisceaux pompes larges, de diamètres supérieurs à 10  $\mu\text{m}$  (cf. paragraphe 1.5.3)
- temps d'intégration de la détection synchrone : 1 s, dépendant de la fréquence de modulation
- temps d'attente entre chaque acquisition : 10 s, lié au temps d'intégration de la détection synchrone et à l'origine des bruits

Finalement, sur ce banc de mesure, l'acquisition d'une cartographie d'absorption de 21 x 21 points dure environ 1 heure 30, ce qui est inacceptable pour la réalisation des expériences de microscopie photothermique avant/après tir.

Or nous voyons que les conditions de mesures sont choisies en fonction de deux paramètres seulement : le bruit et le signal. La diminution du bruit impose un temps d'attente considérable entre chaque acquisition (entre 5 et 10 fois le temps d'intégration de la détection synchrone) et l'augmentation du signal impose une basse fréquence de modulation, donc un temps d'intégration élevé. Tout ceci concourt à augmenter la durée d'acquisition des mesures.

Cependant le premier paramètre qui est modifié dans la configuration microscopie photothermique est le diamètre du faisceau (égal à un micron). Dans ces conditions nous avons vu que le signal ne décroît plus quand la fréquence augmente. Il est alors possible d'utiliser une fréquence plus élevée, donc de diminuer le temps d'intégration de la détection synchrone et l'attente entre chaque acquisition. Ceci est d'autant plus intéressant que le bruit a tendance à diminuer quand la fréquence augmente.

Nous allons détailler tout d'abord l'origine des différents bruits et voir comment les minimiser. Nous nous attacherons ensuite aux aspects liés à la fréquence de modulation.



## Les bruits

Les bruits observés sont de différentes natures : bruit d'obscurité dû au détecteur à quadrants et à l'électronique de la chaîne de mesure, bruit dû aux instabilités de pointé des lasers sonde et pompe, bruit dû à la présence de l'échantillon.

### – Bruit d'obscurité

Le bruit d'obscurité est le signal que l'on mesure sur la détection synchrone lorsque les faisceaux pompe et sonde sont occultés et que tous les autres éléments du montage sont sous tension. Ce bruit est donc la somme du bruit total des quadrants A et B du photo-détecteur, de leurs résistances de charge (bruit de grenaille et bruit Jonhson) et du bruit généré par le montage et la chaîne de mesure. Seule la composante à la fréquence de modulation du faisceau pompe engendre du bruit.

Nous avons étudié l'évolution temporelle de ce bruit dans les conditions expérimentales suivantes : 400 points de mesure, fréquence de modulation de 27 Hz, temps d'intégration de 1 seconde pour la détection synchrone. On obtient alors un écart type  $\sigma_{BO}=22$  nV. Cette composante du bruit est très faible. Elle s'avérera par la suite négligeable par rapport aux autres.

### – Bruit dû aux instabilités de pointé du laser sonde

Pour évaluer ce bruit en alignement du laser sonde, nous avons simplement occulté le faisceau pompe et laissé le spot du faisceau sonde à cheval sur les quadrants A et B du photo-détecteur. L'échantillon est présent dans de porte échantillon, mais n'est pas déplacé. De même que précédemment, seul le terme à la fréquence de modulation du faisceau pompe est source de bruit. Les termes à basses fréquences peuvent être qualifiés de dérive.

Nous avons tout d'abord étudié, dans les mêmes conditions que précédemment, la stabilité angulaire du faisceau sonde en fonction du temps de chauffe. L'amplitude du bruit  $\sigma_{IP}$  fluctue énormément pendant la 1<sup>ère</sup> heure de fonctionnement. Elle se stabilise autour de  $\sigma_{IP}=0,72$   $\mu$ V après 1 à 3 heures de fonctionnement, puis diminue jusqu'à  $\sigma_{IP}=0,52$   $\mu$ V après 4 à 10 heures de fonctionnement.

Nous constatons donc que la stabilité en alignement du faisceau sonde est liée à sa durée de chauffe et qu'elle atteint un palier après quelques heures de fonctionnement. De plus, nous pouvons comparer cette valeur à celle obtenue pour le bruit d'obscurité : nous obtenons un bruit dû aux instabilités de pointé  $\sigma_{IP}=0,52$   $\mu$ V alors que dans le cas du bruit d'obscurité, on avait  $\sigma_{BO}=22$  nV. On négligera par la suite le bruit d'obscurité. Les instabilités de pointé du laser sonde sont donc la source majeure de bruit. Ce sont elles qui fixent la détectivité du dispositif expérimental.

- Bruit dû à la présence de l'échantillon

L'échantillon lui-même peut introduire du bruit dans les mesures. Ce bruit peut être lié à la présence de défauts sur la face arrière de l'échantillon. Il est en fait surtout lié à la déviation du faisceau sonde par le flux d'air créé lors du déplacement de l'échantillon pour la réalisation des cartographies. Pour minimiser ce bruit, il faut attendre que le flux d'air devienne négligeable avant de réaliser une acquisition. Un compromis bruit/durée des acquisitions a été trouvé pour un temps d'attente compris entre 5 et 10 fois le temps d'intégration de la détection synchrone. Dans ces conditions, le bruit dû à la présence de l'échantillon  $\sigma_{PE}$  relevé sur une cartographie 20 x 20 points est  $\sigma_{PE}=0,43 \mu V$ . Il est du même ordre de grandeur que le bruit dû aux instabilités de pointé du laser sonde.

- Bruit dû aux instabilités de pointé relatives des lasers sonde et pompe

Dans ce cas nous sommes en présence de signal, dans les conditions réelles de mesure. Ici, les fluctuations de pointé des 2 lasers jouent un rôle symétrique. Nous avons vu que tout déplacement relatif des faisceaux pompe ou sonde est préjudiciable au signal photothermique. Le terme de fréquence nulle revient à un décalage des 2 faisceaux. Le faisceau sonde n'explore plus la même pente de la gaussienne pompe donc la sensibilité change, le coefficient d'étalonnage devient faux. Le terme à la fréquence de modulation du faisceau pompe engendre un signal parasite qui s'ajoute (en amplitude et en phase) au "vrai" signal photothermique.

Cette composante du bruit peut être chiffrée en enregistrant les fluctuations temporelles du signal en un point. Elle est d'autant plus élevée que le signal est élevé. En notant  $SP_{moy}$  la valeur moyenne du signal photothermique et  $\sigma_{SP}$  le bruit correspondant, on a,  $\sigma_{SP} = 5\% SP_{moy}$ .

Sur une cartographie, pour savoir si les fluctuations observées sont liées aux instabilités de pointé des lasers sonde et pompe ou bien à des inhomogénéités d'absorption de l'échantillon lui-même, il peut être utile de doubler la mesure : si la 2<sup>ème</sup> cartographie est identique à la 1<sup>ère</sup>, le signal est bien dû à l'absorption de l'échantillon ; dans le cas contraire, il peut s'agir de bruit lié aux instabilités de pointé des lasers sonde et pompe.

Finalement, le choix de lasers de grande stabilité en alignement est primordial. Par ailleurs, l'attente entre chaque acquisition est indispensable pour minimiser le bruit lié au flux d'air dû au déplacement de l'échantillon pendant les cartographies. Ce temps d'attente est compris entre 5 et 10 fois le temps d'intégration de la détection synchrone. Augmenter la fréquence de modulation permet alors de diminuer ce temps d'attente.

## La fréquence

Nous avons vu dans le chapitre 1, que pour la configuration microscopie photothermique (faisceaux fortement focalisés), la déflexion photothermique avait un comportement en fréquence bien particulier : la déflexion reste constante sur une large gamme de fréquences, et ne commence à décroître que pour des fréquences de l'ordre du MHz.

Nous avons tout d'abord vérifié ce phénomène et comparé nos résultats expérimentaux aux courbes théoriques, comme présenté sur la figure 3.22.

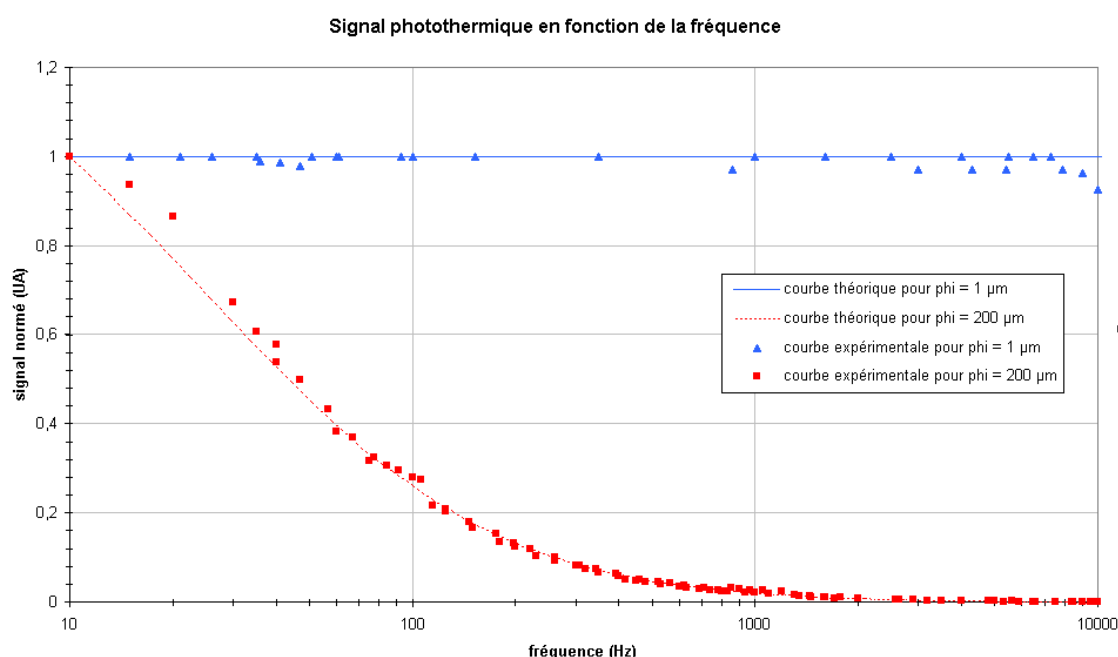


FIG. 3.22 – Signal photothermique en fonction de la fréquence

Nous voyons que pour des petits diamètres de faisceau pompe, tels que  $\Phi = 1 \mu\text{m}$ , nous pouvons aisément augmenter la fréquence de modulation sans perdre de signal. Le choix de la fréquence se fait alors par maximisation du rapport signal sur bruit. La figure 3.23 représente le rapport signal sur bruit en fonction de la fréquence.

Nous déduisons de cette courbe que nous avons intérêt à augmenter la fréquence non seulement pour diminuer la durée des acquisitions mais également pour diminuer le bruit. En effet, nous voyons clairement que le rapport signal sur bruit augmente avec la fréquence. Nous observons également qu'il est maximal aux alentours de 2000 Hz. C'est donc la fréquence que nous choisissons pour la suite des expériences.

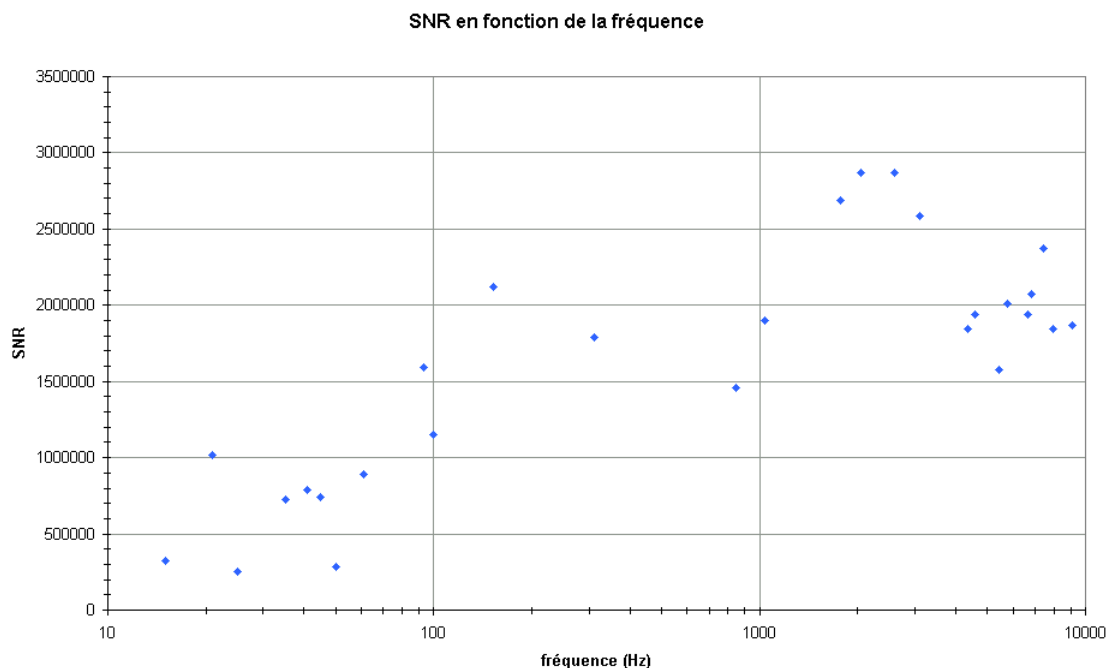


FIG. 3.23 – Rapport signal sur bruit en fonction de la fréquence

Finalement, les paramètres de mesure optimaux sont les suivants :

- diamètre de faisceau pompe :  $1\ \mu\text{m}$
- fréquence de modulation : 2000 Hz
- temps d'intégration de la détection synchrone : 20 ms
- temps d'attente entre chaque acquisition : 1 s

L'acquisition d'une cartographie de  $21 \times 21$  points dure alors seulement 8 minutes, ce qui rend réalisables les expériences de microscopie photothermique avant/après tir, avec les procédures 1/1, S/1 ou R/1 décrites précédemment.

## 3.6 Conclusion

Nous avons tout d'abord présenté la réalisation expérimentale du microscope photothermique et sa caractérisation. Un soin particulier a été apporté à l'obtention d'une haute résolution spatiale latérale et à sa validation. Pour cela, des échantillons présentant des défauts non isolés de  $1\ \mu\text{m}$  de diamètre ont été spécialement fabriqués. Un exemple d'application à l'imagerie haute résolution a alors permis d'illustrer, autant en termes de résolution que de précision de positionnement les performances du microscope photothermique.

### *CHAPITRE 3. RÉALISATION D'UN DISPOSITIF COUPLÉ DE MICROSCOPIE PHOTOTHERMIQUE ET D'ENDOMMAGEMENT LASER*

---

Nous avons ensuite présenté la mise en place du dispositif d'endommagement laser sur le banc du microscope photothermique. Les tests d'endommagement laser sont réalisés grâce à un laser de même longueur d'onde que le laser pompe du microscope, et le positionnement du faisceau est contrôlé par une camera CCD.

Finalement, nous avons présenté les modifications apportées à la procédure expérimentale de microscopie photothermique pour minimiser la durée des acquisitions. En particulier, le choix d'une fréquence de modulation élevée a été rendu possible du fait de la faible influence de la fréquence sur le signal photothermique en configuration microscopie.

Ce dispositif de microscopie photothermique couplé à un banc de test d'endommagement laser peut alors être appliqué à l'étude in situ de la corrélation entre l'absorption des défauts présents dans les matériaux et la tenue au flux de ceux-ci. Le chapitre suivant est consacré aux résultats obtenus sur des échantillons "modèles" constitués d'inclusions d'or enrobées de silice.

## Chapitre 4

# Résultats des expériences de microscopie photothermique avant et après tir sur des nano-défauts

### 4.1 Résumé

Le dispositif de microscopie photothermique couplé à un banc de test d'endommagement laser est appliqué à l'étude non destructive de nano-défauts absorbants, dans le but de comprendre leur rôle dans l'endommagement laser. Afin de disposer d'un matériau expérimental parfaitement connu, des échantillons "modèles" ont été spécialement fabriqués : Les échantillons caractérisés sont constitués d'inclusions d'or de taille sub-micronique calibrées et incluses dans de la silice.

Des mesures de microscopie photothermique sont réalisées avant et après tir à des densités d'énergie inférieures ou égales au seuil d'endommagement. Ces premières mesures sont associées à une étude morphologique réalisée en microscopie optique et en microscopie à force atomique. Celle-ci permet de caractériser les endommagements ainsi que d'analyser la structure de la surface non endommagée après tirs à basse fluence.

L'ensemble de ces expériences a permis de mettre en évidence d'une part que les défauts localisés constitués par les billes d'or sont bien des précurseurs de l'endommagement laser, d'autre part que l'absorption de l'or diminue progressivement suite à des tirs à basse fluence, sans modification de la surface. Ce phénomène peut être considéré comme un processus de "pré-endommagement".

## 4.2 Introduction

Le rôle des défauts locaux dans le processus d'endommagement laser est largement étudié de manière théorique depuis quelques années [116–118]. L'étude présentée ici s'inscrit dans le cadre plus général d'une collaboration avec le CEA/CESTA et le CEA Ile de France. Elle a pour but de valider les hypothèses de la modélisation des mécanismes fondamentaux de l'endommagement laser ainsi que de mesurer les différents paramètres tels que nature, forme, taille et densité des défauts entrant en jeu dans ces mécanismes.

La morphologie et la probabilité d'apparition des endommagements initiés par des défauts locaux dans les verres a été largement étudiée de manière destructive. Cependant, les techniques expérimentales de détection non destructives de ces défauts se sont révélées peu fructueuses jusqu'à ce jour. Un des problèmes posés pour le choix d'une technique de détection non destructive appropriée est l'absence d'informations sur la nature, la taille, la localisation des polluants contenus dans les verres industriels. Les seules données dont nous disposons sont les concentrations de certains métaux (en particulier l'aluminium) présents dans le verre à l'état de trace [119–122].

Afin de pallier cette incertitude et de disposer d'un matériau expérimental parfaitement connu, il est paru intéressant de créer artificiellement des défauts "modèles" [123, 124]. Ils sont constitués d'inclusions d'or de taille sub-micronique calibrées et incluses dans de la silice. Ce type de défaut étant absorbant, le microscope photothermique est un outil particulièrement bien adapté à la caractérisation et détection non destructive de ces défauts.

Par ailleurs, une compréhension fine de l'endommagement laser nécessite de pouvoir analyser les phénomènes précurseurs de l'endommagement qui ne sont pas détectables par les moyens optiques classiques comme l'imagerie ou la diffusion de la lumière. En particulier, pour comprendre le rôle de l'absorption des défauts lors du processus d'endommagement, il nous paraît intéressant d'étudier l'évolution de l'absorption des billes d'or au cours de l'irradiation, avant l'apparition de l'endommagement de la surface.

Le microscope photothermique a été spécialement conçu pour ce genre d'étude, puisqu'il permet de comparer in situ des mesures de microscopie photothermique avant et après irradiation. Le suivi d'une zone déterminée de l'échantillon, constituée dans notre cas d'une bille d'or, avec la densité d'énergie d'irradiation est alors rendu possible. Il permet de chiffrer sans aucun doute possible sur le repositionnement de l'échantillon l'évolution de l'absorption de la zone étudiée.

Nous présentons tout d'abord la caractérisation des échantillons fabriqués, et nous attachons spécialement à la détermination des tailles et distributions des inclusions d'or. Nous montrons ensuite dans le paragraphe 4.4 que le microscope photothermique permet de détecter de manière non destructive les défauts absor-

bants, qu'ils soient présents sous forme d'agrégats ou de nano-inclusions isolées. Le paragraphe 4.5 est consacré à l'étude in situ de l'évolution de l'absorption des billes d'or lors de l'irradiation. Un soin particulier est apporté à l'étude des phénomènes observés avant endommagement.

### 4.3 Les échantillons étudiés

L'endommagement laser dans la silice est attribué à la présence de nano-défauts dans ce matériau. Dans le but d'observer et de comprendre l'initiation de ce type d'endommagement, des échantillons "modèles" ont été fabriqués. Ils sont constitués de nano-inclusions d'or incluses dans de la silice. Afin de connaître la nature exacte de ces échantillons, leur surface a été caractérisée, en vue de déterminer la taille et la densité des inclusions d'or. Nous avons également déterminé la fluence du seuil bas d'endommagement.

#### 4.3.1 Procédé de fabrication

Les échantillons étudiés ont été fabriqués au CEA / LETI. Ils sont constitués de billes d'or de diamètre environ égal à 600 nm enterrés dans de la silice ultra pure. L'ensemble est déposé sur un substrat de silice super-polie. Un schéma descriptif d'un échantillon est représenté sur la figure 4.1.

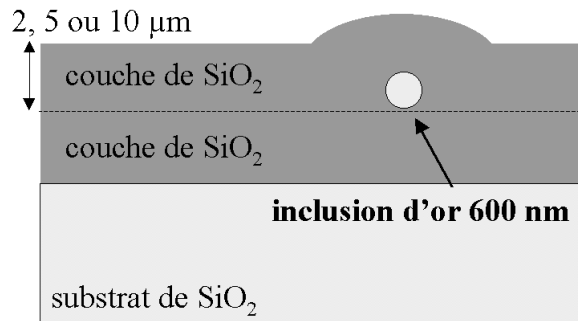


FIG. 4.1 – schéma des échantillons étudiés

La densité surfacique des billes et l'épaisseur de la couche superficielle de silice dépendent du procédé de fabrication utilisé.

Dans notre cas, une première couche de silice est déposée par évaporation classique. Les billes d'or, en suspension dans une solution, sont ensuite déposées à la tournette ("spin coating"). La densité des billes dépend donc de la vitesse de rotation de la tournette, tandis que leur taille est définie par la nature de la solution. Enfin, une deuxième couche de silice est déposée, toujours par évaporation, de manière à recouvrir les billes. Trois épaisseurs différentes ont été choisies pour cette couche superficielle.



Pour ce type d'échantillons, l'emploi de colloïdes contenant des surfactants généralement utilisés pour limiter la coalescence des particules a été évité. En effet, les résidus de ces surfactants pourraient polluer les particules d'or et ainsi compliquer la compréhension des résultats expérimentaux.

Finalement, les spécifications des échantillons fournis sont les suivantes :

- diamètre des billes d'or : 400 à 800 nm
- densité des billes d'or : de 1 à 100 par  $100\text{ }\mu\text{m} \times 100\text{ }\mu\text{m}$
- épaisseur de la couche supérieure de silice : 2  $\mu\text{m}$ , 5  $\mu\text{m}$  ou 10  $\mu\text{m}$
- substrat de silice super-polie, de diamètre 50 mm

### **4.3.2 Caractérisation de la surface des échantillons**

Avant d'effectuer des tests de photothermie et d'endommagement sur ces échantillons, une caractérisation précise de leur état de surface a été réalisée : la présence sur la surface de dômes liés au recouvrement des billes par la couche supérieure de silice permet de détecter les billes, et également de déterminer leur taille.

Plusieurs techniques sont utilisées : la microscopie optique en mode fond noir, en mode Nomarski et la microscopie à force atomique (AFM). La caractérisation des échantillons a fait l'objet du stage de fin d'études de Michela Perra et est détaillée dans la référence [125]. Nous ne présentons ici que les principaux résultats.

#### **Présence de billes, agrégats ou pollution de surface**

Dans un premier temps, nous nous sommes attachés à discerner les billes d'or isolées des agrégats et des pollutions de la surface. Tous ces types de défauts étant diffusants, le microscope optique en mode fond noir est bien adapté à leur détection, comme le montre la figure 4.2.

L'étude menée sur plusieurs échantillons de densités de billes différentes montre la présence de nombreux agrégats, en particulier pour les fortes densités de billes d'or.

Nous visualisons ici uniquement les inhomogénéités diffusantes, c'est à dire dans notre cas essentiellement les variations de profil de la surface ou d'indice de réfraction. Les défauts observés liés à la présence de billes d'or sont en fait les dômes constitués de la couche de silice recouvrant les billes.

On distingue ici parfaitement les billes isolées des agrégats et polluants de surface grâce à leur forme et à leur taille. Les dômes associés aux billes sont parfaitement ronds, contrairement à ceux associés aux agrégats et beaucoup plus larges que les polluants puisque leur largeur est associée non seulement au diamètre de la bille qu'ils recouvrent mais également à l'épaisseur de la couche de silice superficielle.

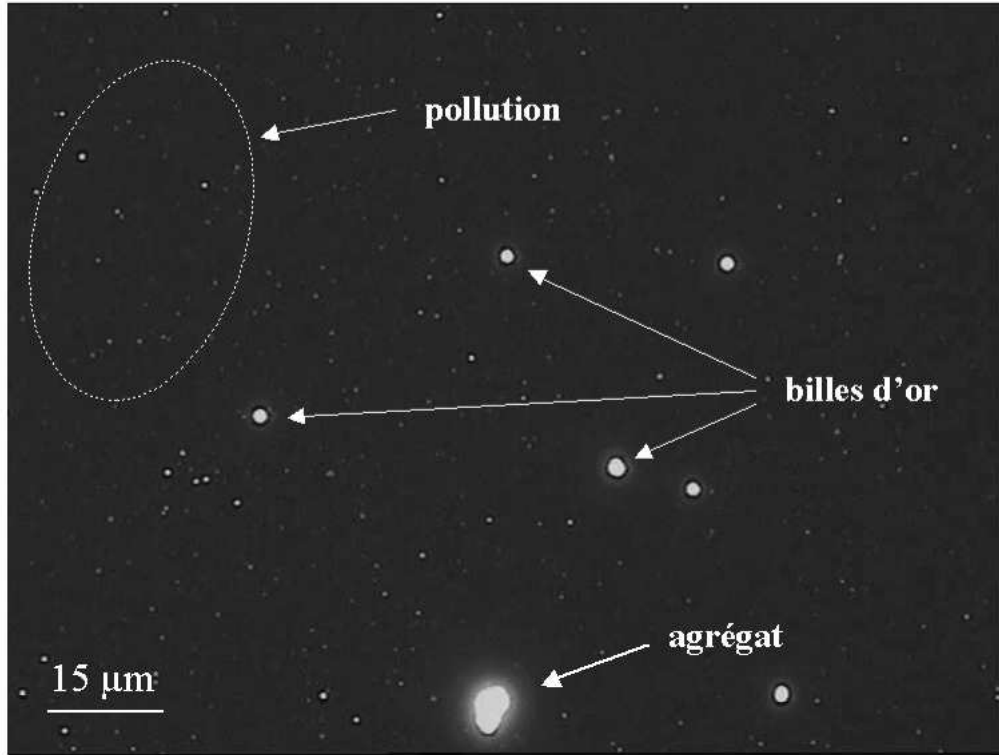


FIG. 4.2 – Observation de l'échantillon en microscope fond noir

Le microscope Nomarski permet, lui, de visualiser des variations de chemin optique. Il est possible de détecter à la fois des variations de profil de la surface et des variations d'indice du matériau.

La figure 4.3 montre comment il est possible de visualiser les dômes associés aux billes d'or en focalisant sur la surface de l'échantillon, ou bien les billes d'or elles-mêmes en focalisant sous la surface. L'échantillon étudié ici étant constitué d'une couche superficielle de silice d'épaisseur  $5\ \mu\text{m}$ , il faut focaliser  $5\ \mu\text{m}$  en dessous de la surface de l'échantillon pour visualiser les billes d'or.

### Détermination précise de la taille des billes

Le diamètre des billes se déduit de celui des dômes et de l'épaisseur de la couche superficielle par un calcul simple [4].

Soit  $e$  l'épaisseur de la couche,  $D_i$  le diamètre d'une bille et  $D_s$  le diamètre du dôme associé, comme représenté sur la figure 4.4.

On a :

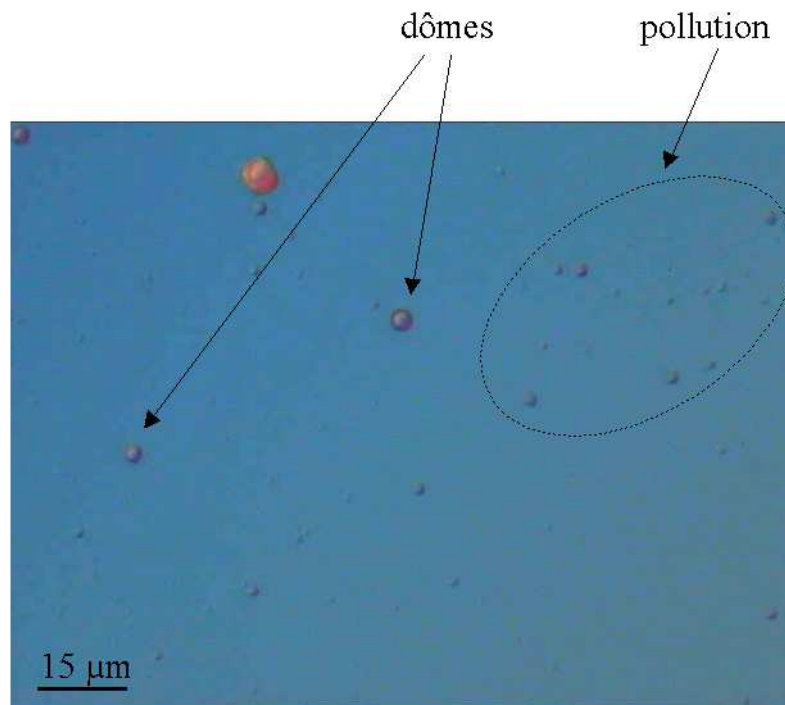
$$D_i = \frac{D_s^2}{8e} \text{ si } D_i \ll e \quad (4.1)$$

Les mesures effectuées au microscope Nomarski donnant accès aux diamètres

*CHAPITRE 4. RÉSULTATS DES EXPÉRIENCES DE MICROSCOPIE  
PHOTOTHERMIQUE AVANT ET APRÈS TIR SUR DES NANO-DÉFAUTS*

---

focalisation sur la surface de l'échantillon



focalisation  $5\ \mu\text{m}$  en dessous de la surface de l'échantillon

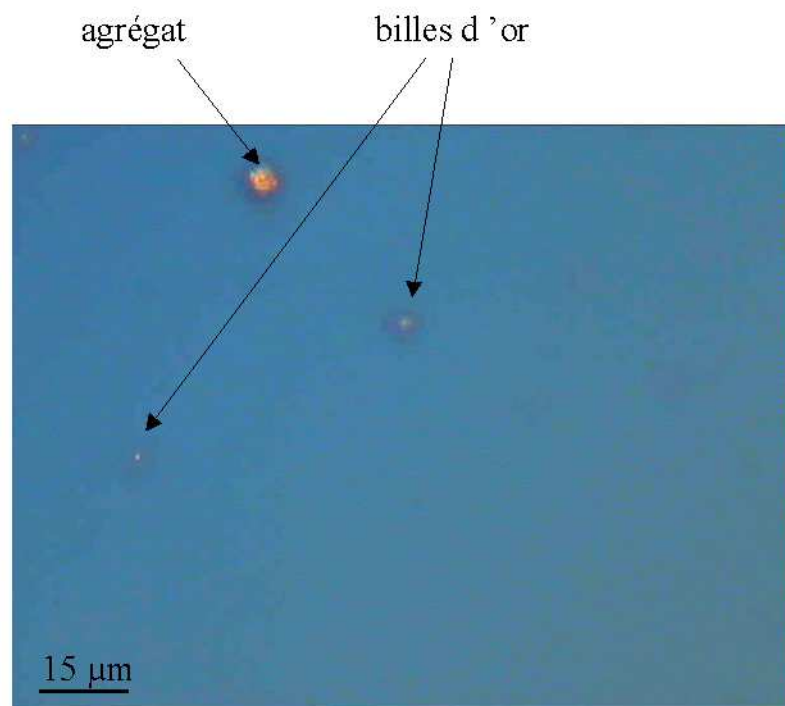


FIG. 4.3 – Observation de l'échantillon en microscope Nomarski

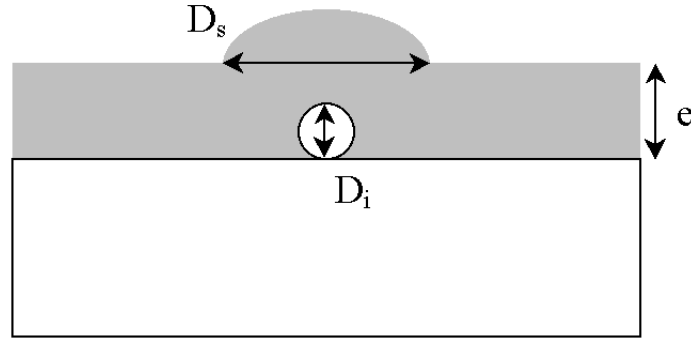


FIG. 4.4 – Schéma d'une bille recouverte de silice

des dômes, nous pouvons en déduire simplement la taille des billes présentes sous le dôme.

Cependant, pour vérifier expérimentalement la validité du calcul précédent, il est nécessaire de connaître la hauteur des dômes. La détermination de ce paramètre grâce au microscope Nomarski est délicate et peu précise.

Pour avoir une mesure précise de la taille des dômes, nous avons donc réalisé des images AFM des échantillons [110]. La figure 4.5 présente les résultats obtenus pour un échantillon dont la couche superficielle a une épaisseur  $e = 5 \mu\text{m}$ .

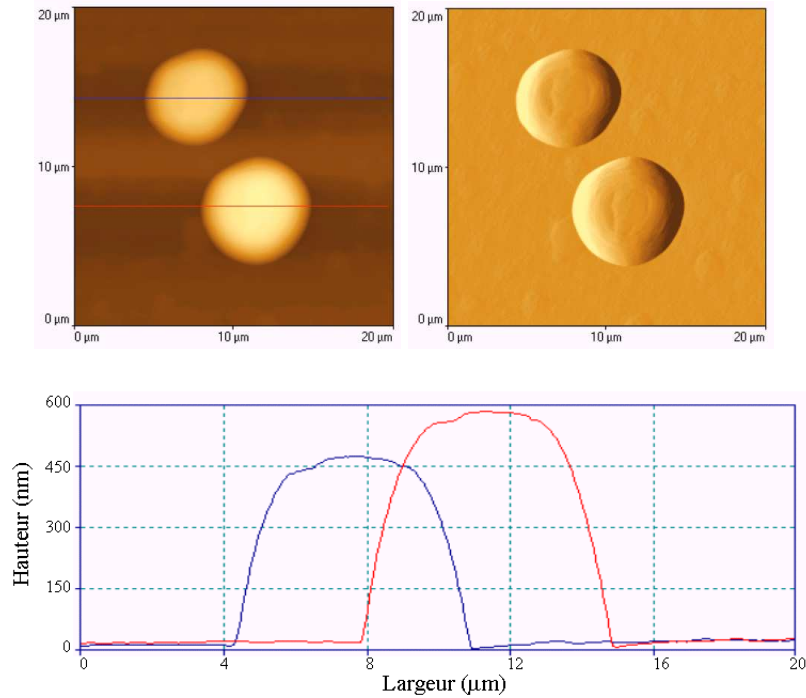


FIG. 4.5 – Mesure des dômes pour  $e = 5 \mu\text{m}$

Une étude statistique réalisée sur les dômes de plusieurs échantillons d'épaisseurs de couche superficielle différentes a été réalisée. Les résultats sont résumés sur la figure 4.6.

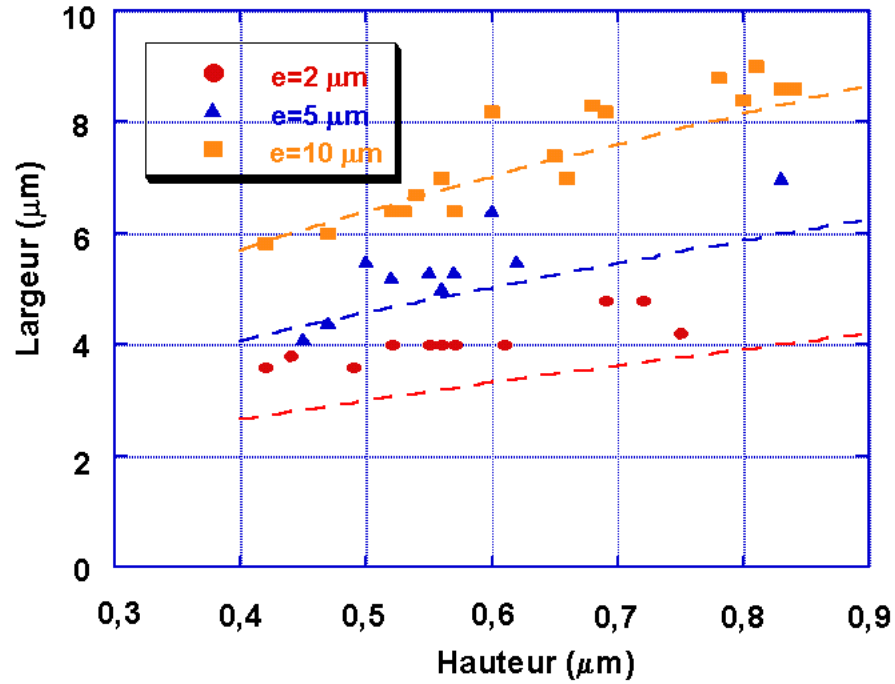


FIG. 4.6 – Mesure des dômes pour  $e = 2, 5$  et  $10 \mu\text{m}$

Nous en déduisons que dans toutes les épaisseurs de couche superficielle, le diamètre des billes présente une distribution allant de 400 nm à 800 nm (diamètre moyen 600 nm). Par la suite nous utiliserons uniquement des échantillons de couche superficielle d'épaisseur  $2 \mu\text{m}$ .

### Détermination de la densité des billes

Les deux techniques de microscopie optique déjà évoquées ainsi que l'AFM permettent de déterminer la densité des billes. L'AFM présentant l'inconvénient d'avoir un faible champ, on préférera les techniques de microscopie optique pour cette étude. Il faut alors prendre soin de bien distinguer les billes des agrégats et des polluants de la surface.

Nous observons que la densité des billes d'or est très inhomogène en fonction de la zone de l'échantillon étudiée. Elle est en moyenne de l'ordre de 5 billes par  $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ .

### 4.3.3 Mesure de la densité d'énergie du seuil bas

La densité d'énergie est mesurée sur le même échantillon qui sera utilisé par la suite pour les expériences de microscopie photothermique avant/après tir. Le banc de test d'endommagement utilisé est celui décrit au paragraphe 3.4.

Afin d'évaluer l'influence de la présence des nano-billes d'or enterrées sous la couche de silice, nous déterminons tout d'abord la densité d'énergie du seuil bas de la couche de silice exempte de tout défaut visible. Nous prenons donc soin d'éviter de tirer sur les dômes recouvrant les billes d'or.

Nous avons vu dans le paragraphe 3.4.3 que la détection de l'endommagement se faisait grâce à un système d'imagerie en fond noir de la surface. Notre critère d'endommagement est donc une détérioration de la surface visible grâce à ce système.

Les tirs sont réalisés avec l'objectif de focalisation permettant de viser les billes d'or et décrit au paragraphe 3.4.1 (diamètre à  $1/e^2$  de la tache de focalisation du laser égal à  $12\text{ }\mu\text{m}$ ). La procédure utilisée est la procédure 1/1 : 10 énergies ont été testées, chacune sur 10 sites différents. Dans ces conditions, la densité d'énergie du seuil bas de la couche de silice, déterminée grâce à l'expression du paragraphe 3.4.4 est  $F_0=52\text{ J/cm}^2$ . Différents types d'endommagements dont 2 sont représentés figure 4.7 sont obtenus lors de cette mesure de seuil.

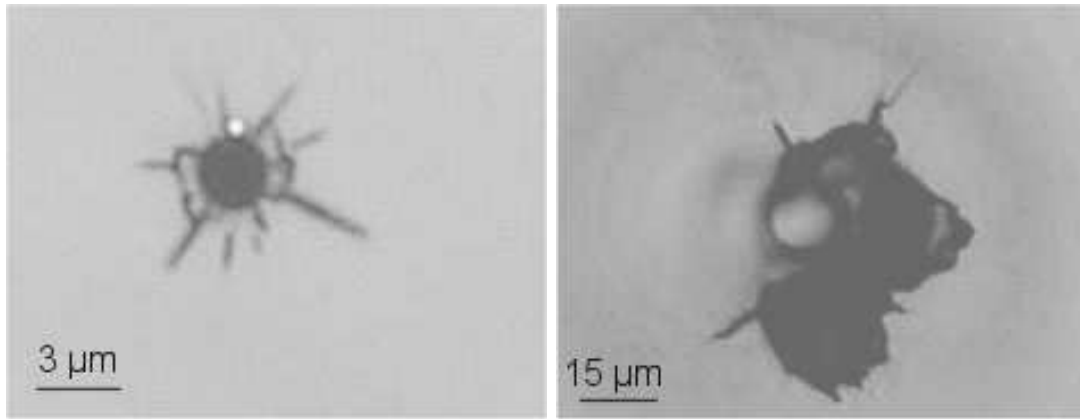


FIG. 4.7 – Endommagements provoqués par des tirs sur la couche superficielle de silice

Nous voyons donc apparaître deux types d'endommagements différents. Dans un cas (à gauche sur la figure 4.7) nous observons la formation d'un trou de forme circulaire de contours bien définis et de diamètre environ égal à  $3\text{ }\mu\text{m}$ . Ce type d'endommagement correspond à une densité d'énergie à peine supérieure à la fluence seuil : la zone endommagée est bien inférieure à la tache de focalisation du laser à la surface de l'échantillon et seule la couche superficielle est endommagée.

Dans le second cas, obtenu avec une densité d'énergie largement supérieure à celle du seuil bas, l'endommagement de la couche superficielle est bien différent : il n'est plus circulaire et ses dimensions sont bien supérieures au cas précédent. De plus on distingue à l'intérieur de l'endommagement un trou de diamètre environ  $15\text{ }\mu\text{m}$  que l'on peut associer à un endommagement du substrat.

Ces différents éléments, taille et densités des billes d'or, densité d'énergie du seuil bas de la couche superficielle de silice, taille et forme des endommagements, nous serviront de référence de comparaison par la suite, lors de l'étude de l'influence des nano-billes d'or sur l'endommagement. Dans le paragraphe suivant, nous présentons la caractérisation des échantillons par microscopie photothermique.

## **4.4 Caractérisation des échantillons par microscopie photothermique**

Nous avons vu que la détection, par le microscope photothermique décrit au chapitre 3, de défauts dont le diamètre est quelques centaines de nanomètres ne devrait pas poser de problème majeur si leur absorption est suffisante.

Le modèle du milieu effectif rappelé paragraphe 3.3.5, parfaitement applicable pour des inclusions d'or de  $2\text{ nm}$  de diamètre ne l'est plus pour des billes de  $600\text{ nm}$  de diamètre. De plus nous allons éclairer ces billes avec un faisceau pompe dont le diamètre est du même ordre de grandeur. Il ne nous est pas possible de prévoir l'absorption effective des échantillons à la longueur d'onde  $1,06\text{ }\mu\text{m}$ . L'expérience montre que dans ces conditions les billes d'or sont parfaitement détectables sur les cartographies photothermiques.

Les principales difficultés expérimentales pour cette étude sont les positionnements relatifs des faisceaux pompe et sonde sur la surface des échantillons, ainsi que leur point de focalisation. Le diamètre des faisceaux pompe et sonde étant de l'ordre du micron, leur longueur de Rayleigh est également de l'ordre du micron. Leur focalisation au niveau d'une inclusion d'or est donc critique.

#### 4.4.1 Cartographies photothermiques de nano-défauts

Une étude détaillée des échantillons a alors été effectuée, de manière à vérifier les observations faites au microscope optique et à l'AFM. Ces observations étaient basées sur une analyse de la surface, dont on déduisait les propriétés du milieu situé en dessous de la surface : taille et densité des billes d'or. Les mesures photothermiques permettent une caractérisation directe des billes, puisque cette technique est sensible uniquement aux variations d'absorption du matériau. En particulier, cette technique est insensible aux inhomogénéités du profil de la surface, et il n'y a aucun risque de confondre une bille d'or avec un contaminant surfacique non absorbant.

Pour les raisons évoquées au chapitre 3 concernant les difficultés d'étalonnage, nous présentons ici uniquement des cartographies non étalonnées. La nature inhomogène des échantillons complique encore plus le problème de l'étalonnage. De toutes façons, dans le mécanisme d'endommagement induit par un nano-défaut, l'absorption joue un rôle initiateur, mais ensuite, la façon dont la chaleur ainsi créée est évacuée joue un rôle complémentaire extrêmement important. Pour cette raison, nous avons choisi de ne pas étalonner les cartographies représentant à la fois des variations relatives d'absorption et éventuellement de propriétés thermiques.

De même que dans l'étude par AFM, nous observons que la taille des billes est assez variable. La variation de taille des billes détectées est mise en évidence sur la figure 4.8. Ces cartographies ont été réalisées sur un échantillon dont l'épaisseur de la couche superficielle est  $2\text{ }\mu\text{m}$ . Le diamètre à  $1/e^2$  du faisceau pompe est  $1\text{ }\mu\text{m}$ . Il est égal dans ces cartographies au pas d'échantillonnage. Les cartographies sont constituées de  $21 \times 21$  points. Une surface totale de  $20\text{ }\mu\text{m} \times 20\text{ }\mu\text{m}$  est donc inspectée.

Nous observons une bille de faible diamètre, une bille de diamètre plus élevé, deux billes "jumelles", ainsi qu'un agrégat. On peut remarquer que sur la cartographie de l'agrégat on distingue bien les différentes billes dont il est constitué.

Dans le cas de billes isolées, le diamètre effectif de la bille sur la cartographie photothermique est bien entendu, comme déjà discuté au chapitre 1, le résultat de la convolution de la forme de la bille par la gaussienne du pompe. Ainsi, une bille de diamètre négligeable ou nul apparaîtrait toujours comme ayant la taille du faisceau pompe. Compte tenu de cet effet, les diamètres des billes obtenus par microscopie sont en accord avec ceux obtenus par les autres techniques.



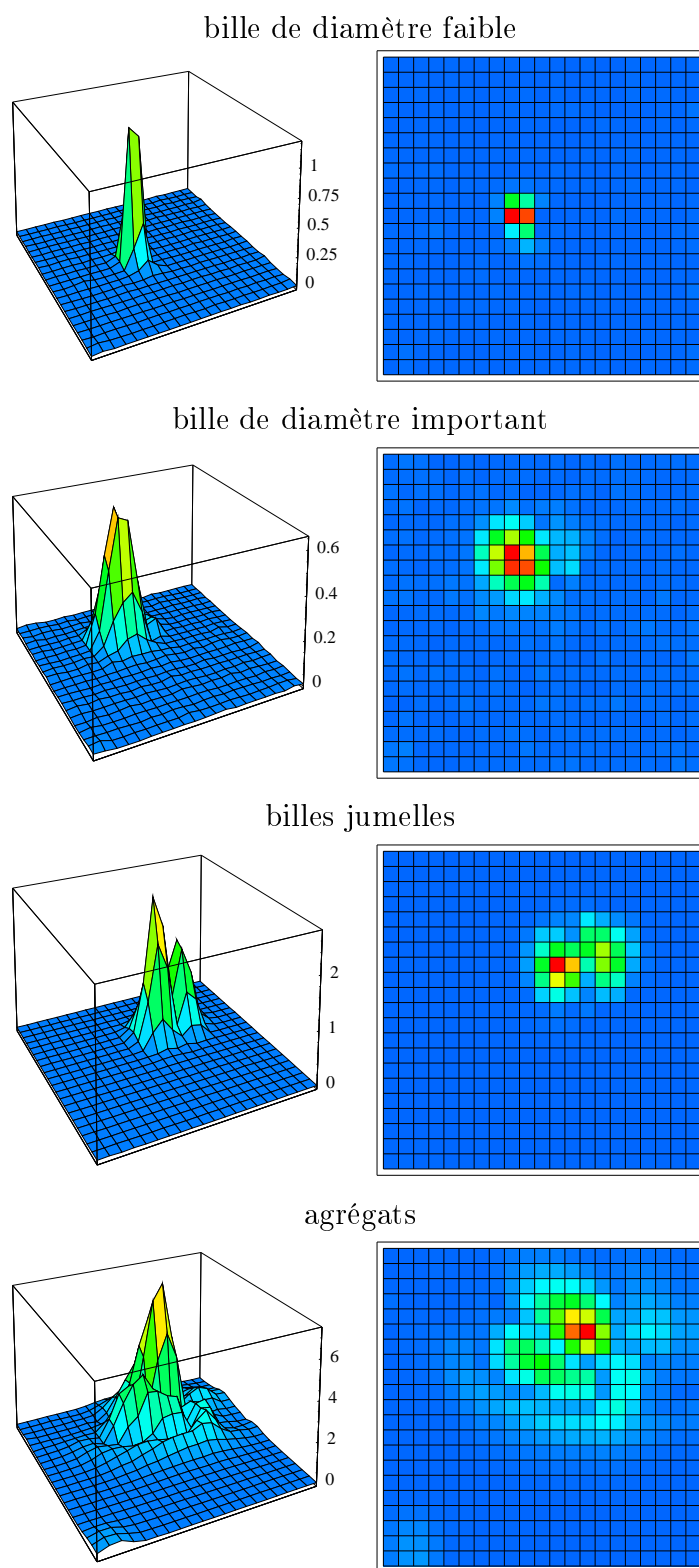


FIG. 4.8 – Différentes tailles de billes d'or observées ; conditions expérimentales : diamètre du faisceau pompe = pas d'échantillonnage =  $1\ \mu\text{m}$ , zone cartographiée =  $20\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$

#### 4.4.2 Répétabilité des mesures

Nous nous sommes posé la question de la répétabilité des mesures, et de la possibilité d'une fusion des billes d'or par le faisceau pompe lors de leur mesure en photothermie.

Expérimentalement, nous vérifions bien qu'aucune dégradation des billes ne se produit lors de la mesure, puisque deux mesures successives d'une même bille donnent la même cartographie, à la fois en termes de valeur maximale du signal photothermique et en termes de taille du défaut absorbant. Ces résultats sont présentés figure 4.9.

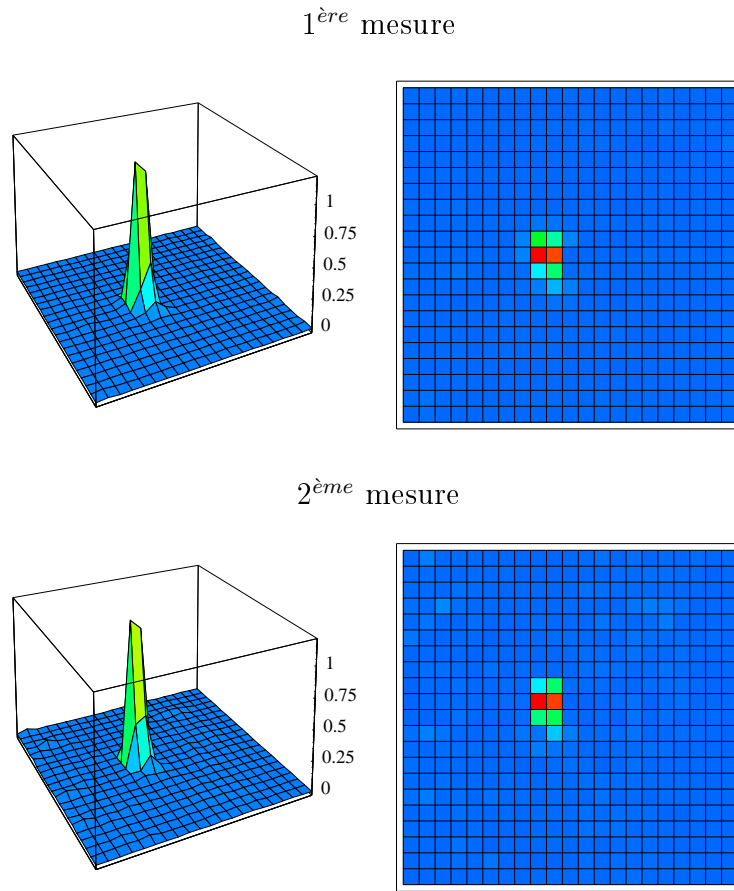


FIG. 4.9 – Exemple de répétabilité; conditions expérimentales : diamètre du faisceau pompe = pas d'échantillonnage =  $1\ \mu\text{m}$ , zone cartographiée =  $20\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$

De même que précédemment, ces cartographies ont été réalisées avec un faisceau pompe de diamètre à  $1/e^2$  de  $1\ \mu\text{m}$  égal au pas d'échantillonnage et sont constituées de  $21 \times 21$  points. Une surface de  $20\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$  est donc inspectée.

Le microscope photothermique permet donc bien de caractériser les échantillons de manière précise et répétable. Contrairement aux mesures par AFM et microscopie optique qui donnent essentiellement des informations sur la structure de la surface (et éventuellement sur les variations d'indice dans le cas du microscope Nomarski), le microscope photothermique renseigne sur les variations spatiales de l'absorption et de propriétés thermiques, qui jouent un rôle prépondérant dans les phénomènes d'endommagement laser. Les résultats des expériences de microscopie photothermique avant/après tir sur les inclusions d'or sont présentées dans la partie suivante

## **4.5 Résultats des expériences de microscopie photothermique avant/après tir**

Pour comprendre le rôle de l'absorption des billes d'or lors du processus d'endommagement, plusieurs expériences de tirs, corrélées à des mesures photothermiques avant et après tirs ont été effectuées.

Toutes les cartographies présentées par la suite ont été réalisées sur des échantillons dont la couche superficielle de silice a une épaisseur de  $2\ \mu\text{m}$ . Nous prenons soin d'effectuer les tirs sur des billes isolées de manière à éviter les effets collectifs dans le processus d'endommagement [126].

Les conditions expérimentales sont les suivantes :

- diamètre du faisceau pompe =  $1\ \mu\text{m}$
- pas d'échantillonnage =  $1\ \mu\text{m}$
- nombre de points =  $21 \times 21$
- $\Rightarrow$  zone cartographiée =  $20\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$

Deux types de cartographies sont présentées : d'une part des cartographies photothermiques représentant les variations de signal photothermique, d'autre part des cartographies que nous appellerons dans la suite de "réfraction", représentant les variations du profil de la surface. Ces dernières sont réalisées simultanément aux cartographies photothermiques. Le signal est toujours constitué de la différence de tension  $V_A - V_B$  entre les deux quadrants du photodétecteur mais mesurée à la fréquence nulle, via deux voltmètres. Il est donc proportionnel à l'angle de réfraction du faisceau sonde à la surface de l'échantillon et donc à la dérivée du profil de la surface.

De même que précédemment, nous n'étalonnons pas les cartographies. Pour avoir une référence de comparaison pour ces cartographies, nous avons réalisé des mesures de bruit dans les conditions exactes des expériences, avec l'échantillon présent, mais le faisceau pompe occulté. Nous obtenons alors les résultats suivants

exprimés en unité arbitraire (U.A.) pour ces cartographies de bruit :

- Valeur maximale du bruit :  $\text{Max} = 3,9 \cdot 10^{-2}$
- Valeur minimale du bruit :  $\text{Min} = 0$
- Valeur moyenne du bruit :  $\text{Moy} = 1,8 \cdot 10^{-3}$
- Ecart type du bruit :  $\sigma = 2,5 \cdot 10^{-3}$

En ce qui concerne les valeurs de densité d'énergie données dans les paragraphes suivants, les erreurs éventuelles de dépointage entraînent une erreur sur la détermination de la valeur absolue de la densité d'énergie qu'on peut estimer à 10 % [79]. De plus, du fait du faible diamètre du faisceau d'irradiation, les erreurs de positionnement peuvent entraîner une erreur non négligeable sur l'estimation de la densité d'énergie d'irradiation.

De plus nous avons vu au paragraphe 4.3.2 que la couche de silice superficielle n'était pas parfaitement homogène du fait de la présence de polluants surfaciques et que la taille des billes variait du simple au double sur un même échantillon. Ces phénomènes ayant pour conséquence des modifications de la tenue au flux des matériaux, il faut en tenir compte dans l'interprétation des résultats.

#### 4.5.1 Procédure 1/1

##### Tir à la densité d'énergie 50 J/cm<sup>2</sup>

Un tir à une densité d'énergie de 50 J/cm<sup>2</sup>, environ égale à la densité d'énergie du seuil bas de la couche de silice superficielle, a été réalisé sur une bille d'or. Les résultats des mesures photothermiques avant et après tirs sont représentés figure 4.10.

Les cartographies a et b sont des cartographies photothermiques représentant les variations de signal photothermique et les cartographies c et d sont des cartographies de réfraction représentant la dérivée du profil de la surface de l'échantillon. Les cartographies a et c (respectivement b et d) sont simultanées et représentent donc exactement la même zone de l'échantillon.

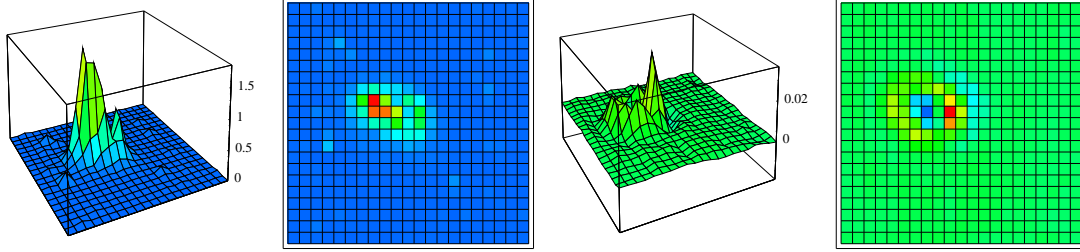
Sur la cartographie a, réalisée avant tir, on visualise parfaitement la bille d'or avec une valeur maximale  $\text{Max} = 1,83$ , mille fois supérieure à la valeur moyenne du bruit.

Par contre, sur la cartographie b, réalisée après tir à une densité d'énergie de 50 J/cm<sup>2</sup>, la bille a totalement disparu : la valeur moyenne de la cartographie est  $\text{Moy} = 5,6 \cdot 10^{-3}$ . Elle est à peine supérieure à la valeur moyenne du bruit mais quelques pixels ont une valeur supérieure avec une valeur maximale  $\text{Max} = 0,035$ . Seule la comparaison pixel à pixel de la cartographie b à la cartographie d permet d'affirmer que ces pixels représentent bien une absorption résiduelle de l'or. En effet, cette comparaison montre que ces pixels sont situés à l'endroit même où était situé le dôme de la bille d'or.

## CHAPITRE 4. RÉSULTATS DES EXPÉRIENCES DE MICROSCOPIE PHOTOTHERMIQUE AVANT ET APRÈS TIR SUR DES NANO-DÉFAUTS

a : mesure photothermique avant tir

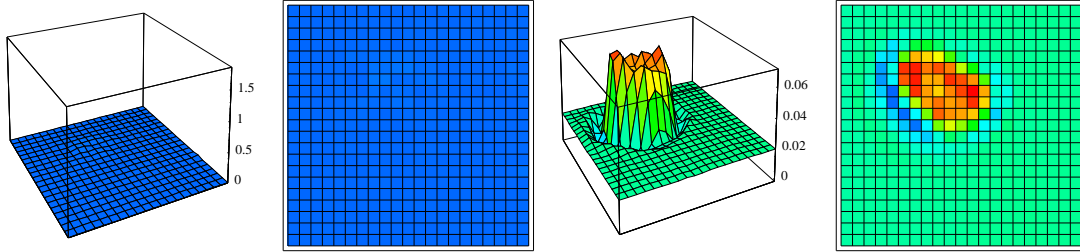
c : mesure de réfraction avant tir



Max = 1,83 ; Min =  $3,1 \cdot 10^{-4}$   
Moy =  $4,8 \cdot 10^{-2}$  ; Sigma = 0,18 (U.A.)

b : mesure photothermique après tir

d : mesure de réfraction après tir



Max = 0,035 ; Min =  $2,4 \cdot 10^{-4}$   
Moy =  $5,6 \cdot 10^{-3}$  ; Sigma =  $4,6 \cdot 10^{-3}$  (U.A.)

FIG. 4.10 – Mesures avant et après tir à la densité d'énergie  $50 \text{ J/cm}^2$  ; conditions expérimentales : diamètre du faisceau pompe = pas d'échantillonnage =  $1 \text{ } \mu\text{m}$ , zone cartographiée =  $20 \text{ } \mu\text{m} \times 20 \text{ } \mu\text{m}$

Ensuite, bien que l'observation de la cartographie d ne montre pas d'éclatement du dôme à proprement parler, sa structure a été modifiée, ce qui tend à prouver qu'un endommagement s'est produit. Malheureusement, il a été impossible de se repositionner précisément à cet endroit et nous n'avons pu réaliser de mesures par microscopie optique ou AFM de cette zone.

### Tir à la densité d'énergie $15 \text{ J/cm}^2$

La figure 4.11 montre les résultats obtenus pour un tir sur une nano-bille d'or à la densité d'énergie  $15 \text{ J/cm}^2$  bien inférieure à la densité d'énergie du seuil bas de la couche de silice superficielle.

Des commentaires similaires aux précédents peuvent être faits.

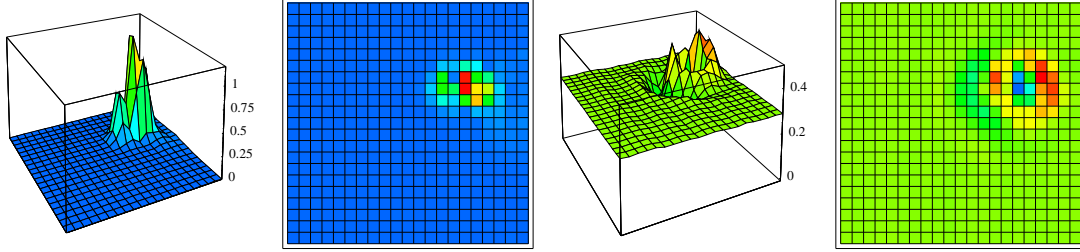
Sur la cartographie a, réalisée avant tir, on observe que la bille d'or est par-

#### 4.5. RÉSULTATS DES EXPÉRIENCES DE MICROSCOPIE PHOTOTHERMIQUE AVANT/APRÈS TIR

---

a : mesure photothermique avant tir

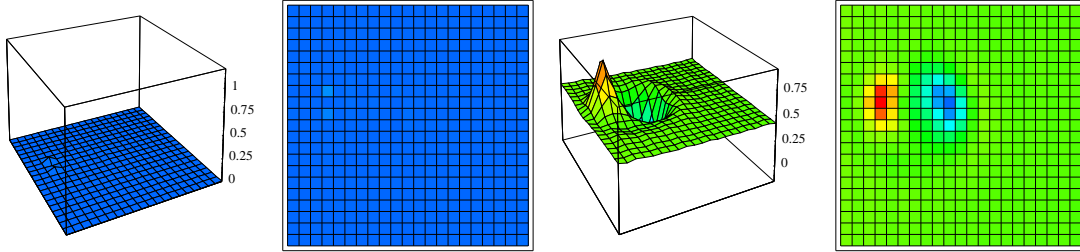
c : mesure de réfraction avant tir



Max = 1,19; Min =  $1,7 \cdot 10^{-4}$   
Moy =  $2,8 \cdot 10^{-2}$ ; Sigma = 0,12 (U.A.)

b : mesure photothermique après tir

d : mesure de réfraction après tir



Max = 0,01; Min = 0  
Moy =  $2,4 \cdot 10^{-3}$ ; Sigma =  $1,6 \cdot 10^{-3}$  (U.A.)

FIG. 4.11 – Mesures avant et après tir à la densité d'énergie de  $15 \text{ J/cm}^2$ ; conditions expérimentales : diamètre du faisceau pompe = pas d'échantillonnage =  $1 \mu\text{m}$ , zone cartographiée =  $20 \mu\text{m} \times 20 \mu\text{m}$

faitement détectée et localisée avec une valeur maximale Max = 1,19 largement supérieure à la valeur moyenne du bruit.

Cette valeur a considérablement décri après tir, puisque la valeur maximale de la cartographie b n'est plus que Max = 0,01. Cependant, comme précédemment, la valeur moyenne Moy =  $2,4 \cdot 10^{-3}$  de la cartographie après tir reste légèrement supérieure à celle du bruit. La comparaison pixel à pixel de la cartographie b à la cartographie d montre bien que les maxima d'absorption sont situés au niveau du dôme. Toutefois il n'est plus possible de localiser les contours de la bille d'or et on peut seulement parler d'absorption résiduelle.

Ici encore, l'observation de la cartographie d montre une modification de la structure du dôme, ce qui tend à prouver qu'un endommagement s'est produit. Ainsi, si les cartographies de réfraction ne sont pas suffisantes pour déterminer la morphologie de l'endommagement, elles permettent bien de vérifier s'il a eu lieu.

### 4.5.2 Procédure R/1

Pour comprendre l'évolution des propriétés d'une bille d'or avant que son absorption ait presque totalement disparu (comme dans les deux cas précédents), nous avons tout d'abord tiré sur une bille à basse densité d'énergie ( $2 \text{ J/cm}^2$ ) et avons mesuré son absorption. Puis nous avons répété cette opération en augmentant légèrement la densité d'énergie jusqu'à ce que l'absorption de la bille soit confondue avec le bruit.

Les résultats sont regroupés figure 4.12 et tableau 4.1.

	Maximum	Minimum	Moyenne	Ecart type
Avant tir	1	$1,4 \cdot 10^{-4}$	$2,6 \cdot 10^{-2}$	0,1
Après tir à $2 \text{ J/cm}^2$	0,3	$1,2 \cdot 10^{-4}$	$1,2 \cdot 10^{-2}$	$3,4 \cdot 10^{-2}$
Après tir à $3 \text{ J/cm}^2$	0,3	$1,3 \cdot 10^{-4}$	$6,7 \cdot 10^{-3}$	$3,3 \cdot 10^{-2}$
Après tir à $4 \text{ J/cm}^2$	0,14	$6,5 \cdot 10^{-5}$	$6,7 \cdot 10^{-3}$	$1,4 \cdot 10^{-2}$
Après tir à $10 \text{ J/cm}^2$	0,05	0	$2,3 \cdot 10^{-3}$	$3,1 \cdot 10^{-3}$

TAB. 4.1 – Résultats des mesures photothermiques réalisées suivant la procédure R/1 exprimés en unité arbitraire

Les mêmes commentaires que précédemment peuvent être faits, mais cette fois le processus est décomposé.

Après le 1<sup>er</sup> tir, à la densité d'énergie  $2 \text{ J/cm}^2$ , on observe une nette décroissance de la valeur maximale de l'absorption de la bille d'or : avant tir  $\text{Max} = 1$  et après tir  $\text{Max} = 0,3$ . Par ailleurs, la forme du défaut absorbant s'est considérablement modifiée : la bille semble s'être étalée.

Après le 2<sup>ème</sup> tir, à la densité d'énergie  $3 \text{ J/cm}^2$ , la valeur maximale de l'absorption n'a pas évolué mais la forme du défaut a continué de se modifier. En particulier, on distingue certaines parties du défaut absorbant qui semblent se détacher du défaut principal.

La modification de la forme du défaut s'accroît après le 3<sup>ème</sup> tir, à la densité d'énergie  $4 \text{ J/cm}^2$ , et les contours du défaut absorbant deviennent difficiles à définir. Par ailleurs, l'absorption maximale a encore diminué :  $\text{Max} = 0,14$ . Cette valeur reste cependant encore cent fois supérieure à la valeur moyenne du bruit.

La dernière cartographie photothermique, réalisée après tir à la densité d'énergie  $10 \text{ J/cm}^2$ , s'apparente aux cartographies b des figures 4.10 et 4.11. Le défaut absorbant a totalement disparu. La valeur moyenne de la cartographie est  $\text{Moy} = 2,3 \cdot 10^{-3}$ , à peine supérieure à la valeur moyenne du bruit. Seuls quelques pixels ont une valeur supérieure.

Parallèlement, les cartographies de réfraction nous renseignent sur l'allure du profil de la surface. On n'observe aucune modification majeure de l'allure

#### 4.5. RÉSULTATS DES EXPÉRIENCES DE MICROSCOPIE PHOTOTHERMIQUE AVANT/APRÈS TIR

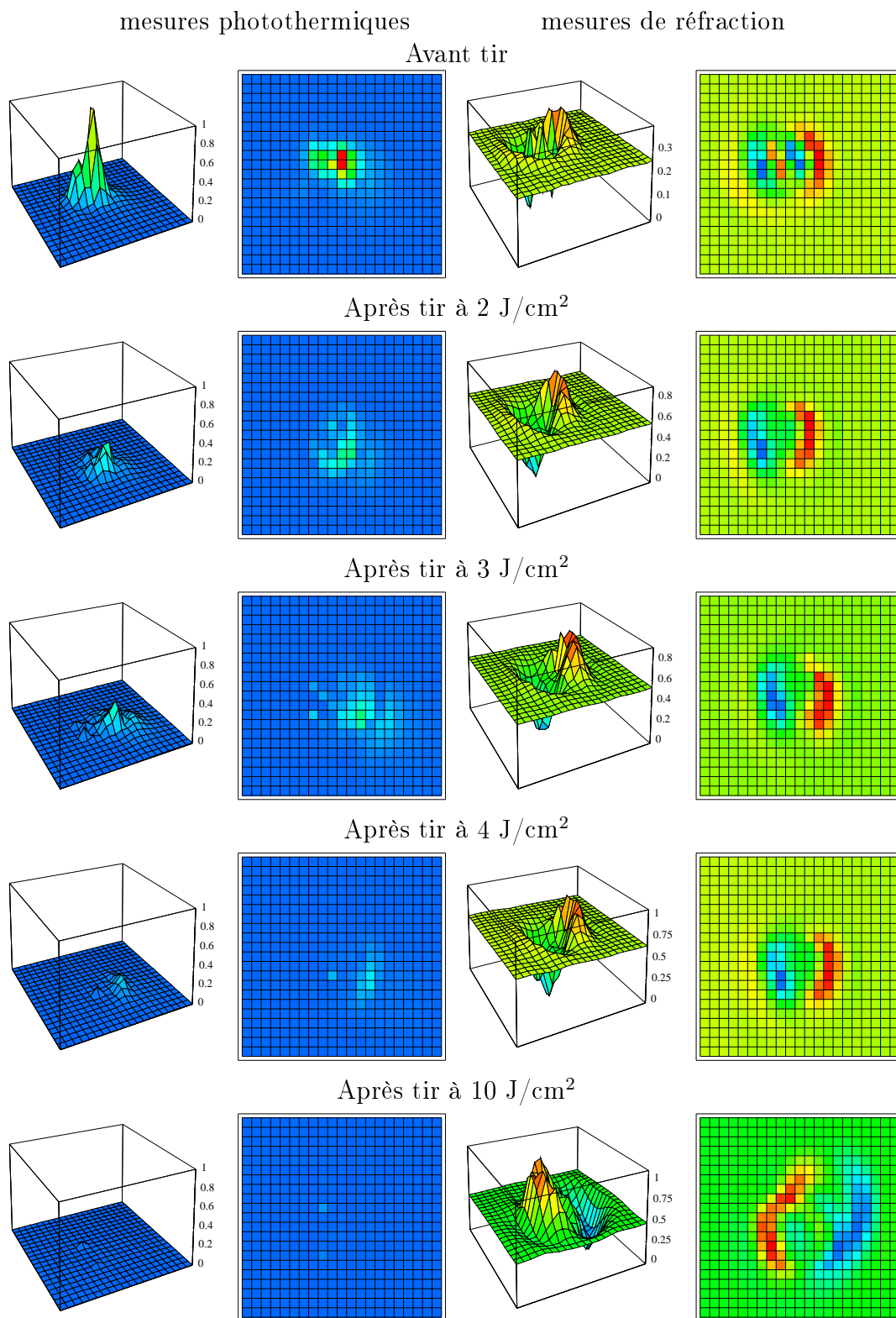


FIG. 4.12 – Mesures avant/après tir réalisées suivant la procédure R/1 ; conditions expérimentales : diamètre du faisceau pompe = pas d'échantillonnage = 1  $\mu\text{m}$ , zone cartographiée = 20  $\mu\text{m}$  x 20  $\mu\text{m}$



## *CHAPITRE 4. RÉSULTATS DES EXPÉRIENCES DE MICROSCOPIE PHOTOTHERMIQUE AVANT ET APRÈS TIR SUR DES NANO-DÉFAUTS*

---

du dôme jusqu'au tir à  $10 \text{ J/cm}^2$ . Sur cette dernière cartographie, une marque légèrement décalée par rapport au dôme apparaît. De plus, le signe de la pente de la surface au niveau de la bille d'or est inversé sur cette dernière cartographie, ce qui indique que la surface n'est plus constituée d'un dôme mais d'un cratère. Les images réalisées au microscope Nomarski (figure 4.13) confirment bien qu'un endommagement s'est produit à cet endroit.

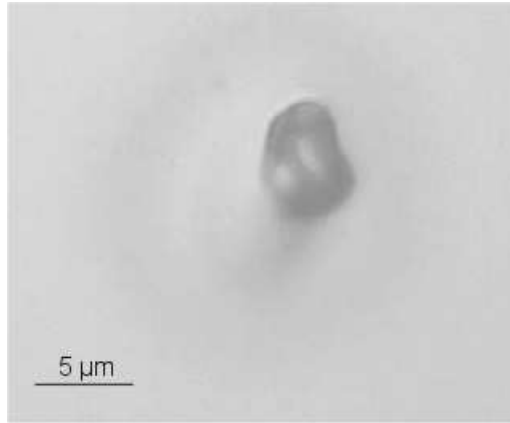


FIG. 4.13 – Endommagement du dôme observé au microscope Nomarski après tir à  $10 \text{ J/cm}^2$

### **4.5.3 Tir à coté d'une bille**

Ce dernier cas illustre le phénomène produit lorsque l'on tire à coté d'une bille d'or. Ici, le tir a été réalisé à une densité d'énergie de  $30 \text{ J/cm}^2$  et à une distance de  $15 \mu\text{m}$  d'une bille d'or.

Malgré la faible densité d'énergie, la couche de silice a été endommagée. Cet endommagement a probablement été induit par un polluant non détecté par notre système d'imagerie. En effet, nous avons mis en évidence au paragraphe 4.3.2 la présence de nombreux polluants surfaciques pouvant également être responsables de l'endommagement des échantillons.

On observe sur la figure 4.14 les effets du claquage de la silice sur une bille située à  $15 \mu\text{m}$  de la zone endommagée.

La comparaison des cartographies b et d permet de repérer la trace de l'impact (à gauche sur la cartographie d) ainsi que le dôme. Nous vérifions donc que le défaut de forme allongée visible sur la cartographie b correspond bien à l'emplacement du dôme.

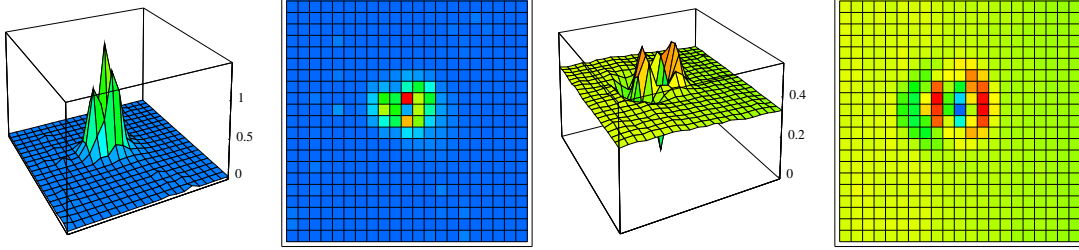
Ce qui est remarquable ici est qu'un endommagement, provoqué par un faisceau d'irradiation de  $12 \mu\text{m}$  de diamètre, à une distance de  $15 \mu\text{m}$  d'une bille, ait un effet si important sur l'absorption de celle-ci. On observe une diminution considérable de la valeur maximale de l'absorption :  $\text{Max} = 1,4$  avant tir, tandis

#### 4.5. RÉSULTATS DES EXPÉRIENCES DE MICROSCOPIE PHOTOTHERMIQUE AVANT/APRÈS TIR

---

a : mesure photothermique avant tir

c : mesure de réfraction avant tir

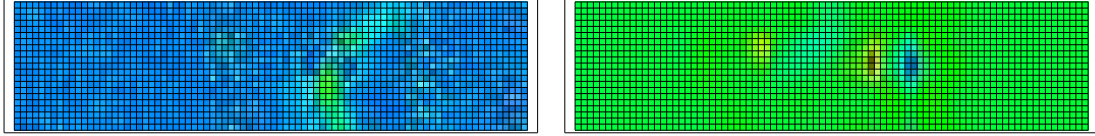


Max = 1,4 ; Min = 0

Moy =  $3,3 \cdot 10^{-2}$  ; Sigma = 0,14

b : mesure photothermique après tir

d : mesure de réfraction après tir



Max = 0,018 ; Min = 0

Moy =  $2,8 \cdot 10^{-3}$  ; Sigma =  $4,7 \cdot 10^{-3}$

FIG. 4.14 – Mesures avant et après tir à coté d'une bille à  $30 \text{ J/cm}^2$  ; conditions expérimentales : diamètre du faisceau pompe = pas d'échantillonnage =  $1 \text{ }\mu\text{m}$ , zone cartographiée =  $85 \text{ }\mu\text{m} \times 20 \text{ }\mu\text{m}$

qu'après tir on a seulement Max = 0,018. On observe également un changement frappant de la forme du défaut absorbant. Avant tir la zone absorbante est relativement circulaire, puisque constituée d'une bille d'or, tandis qu'après tir, elle prend une forme allongée, étirée dans la direction opposée au tir, comme si la bille d'or avait été soufflée.

La densité d'énergie calculée à  $15 \text{ }\mu\text{m}$  du centre de l'impact est de l'ordre de  $10^{-4} \text{ J/cm}^2$  pour un faisceau gaussien de diamètre  $12 \text{ }\mu\text{m}$ . Même en tenant compte d'une erreur de focalisation de 10 %, cette densité d'énergie ne dépasse pas  $10^{-3} \text{ J/cm}^2$ . Il ne paraît donc pas raisonnable d'attribuer les modifications observées en microscopie photothermique uniquement au processus d'irradiation, d'autant plus que le dôme recouvrant la bille a été endommagé, comme le montre l'image réalisée au microscope Nomarski présentée figure 4.15.

Sur cette image Nomarski on peut également remarquer une traînée claire de même forme et mêmes dimensions que le défaut de forme allongée visible sur la cartographie b de la figure 4.14.

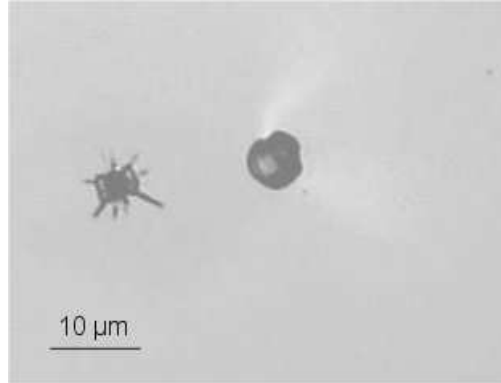


FIG. 4.15 – Endommagement de la couche de silice et du dôme observé au microscope Nomarski

La forme de ce défaut et sa position par rapport à l'impact laissent penser que les effets observés ici sont ceux du plasma créé par l'endommagement de la silice. Typiquement, un plasma peut s'étendre sur une distance supérieure à la distance impact-bille d'or précédente, à savoir  $15\text{ }\mu\text{m}$  [79] et atteindre une température largement supérieure à celle de la température de fusion de l'or. Les mécanismes entrant en jeu dans ce cas sont complexes et mal connus et nous n'avons pas poussé l'étude plus loin.

#### 4.5.4 Conclusions préliminaires

La première conclusion à tirer de ces expériences est que les défauts localisés constitués par les billes d'or sont bien des précurseurs de l'endommagement laser. En effet, alors que la densité d'énergie du seuil bas de la couche de silice est de l'ordre de  $50\text{ J/cm}^2$ , nous observons un endommagement du dôme recouvrant les billes d'or pour des densités d'énergies de l'ordre de  $10\text{ J/cm}^2$ .

De plus, le résultat le plus marquant de ces expériences de microscopie photothermique avant/après tir est la mise en évidence de la diminution progressive de l'absorption de l'or suite à des tirs à basse densité d'énergie sans modification visible de la surface de la couche. Le système d'imagerie n'étant pas suffisamment performant pour détecter de faibles modifications de l'état de surface telles que des micro-fractures, des études morphologiques par microscopie optique et AFM sont menées et décrites au paragraphe suivant.

#### 4.5.5 Etudes morphologiques après tirs

Ces études morphologiques sont réalisées en microscopie optique et en AFM. Elles permettent d'une part de caractériser avec précision les endommagements liés à des tirs localisés sur des billes d'or à des fluences supérieures à  $10 \text{ J/cm}^2$  et d'autre part d'analyser la structure de la surface des dômes après tirs à basse fluence (quelques  $\text{J/cm}^2$ ).

Les résultats des mesures de photothermie et de morphologie obtenus sur un échantillon de couche superficielle d'épaisseur  $2 \mu\text{m}$  sont résumés figure 4.16.

Sur cette figure, les images Nomarski Interface sont réalisées en faisant la mise au point  $2 \mu\text{m}$  en dessous de la surface de l'échantillon, c'est à dire dans le plan où se situent les billes d'or, tandis que les images Nomarski Surface sont réalisées en faisant la mise au point sur la surface de l'échantillon.

Les dimensions des zones étudiées grâce au microscope photothermique (signal photothermique et réfraction) et au microscope Nomarski sont sensiblement similaires :  $20 \mu\text{m} \times 20 \mu\text{m}$  avec le microscope photothermique,  $25 \mu\text{m} \times 25 \mu\text{m}$  avec le microscope Nomarski. En ce qui concerne les images AFM, on s'intéresse à l'état de la surface au niveau de la bille, c'est pourquoi on a effectué des zooms de  $5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$  sur les dômes ou les cratères.

Contrairement aux mesures réalisées grâce au microscope photothermique, les études de morphologies sont menées sur des billes différentes à chaque tir, de manière à éviter tout problème lié à un mauvais repositionnement. En effet, pour réaliser les mesures grâce au microscope Nomarski et à l'AFM, il est nécessaire de retirer l'échantillon du porte échantillon du dispositif du microscope photothermique. Par contre, un positionnement précis de l'échantillon a pu être établi entre les mesures au microscope Nomarski et à l'AFM : chaque dôme (ou cratère) visualisé au microscope Nomarski est absolument identique à celui topographié à l'AFM, pour une fluence donnée.

Par ailleurs, les résultats de l'étude photothermique et ceux de l'étude morphologique ne sont pas obtenus après les mêmes tirs. Compte tenu des erreurs éventuelles de dépointage et de positionnement, les densités d'énergie vues par les billes dans le cas des mesures photothermiques et dans le cas des mesures morphologiques ne sont donc pas strictement égales. C'est pourquoi on donne sur la figure 4.16 une page de densité d'énergie.

Malgré les différences de conditions expérimentales entre les mesures réalisées au microscope photothermique et celles réalisées au microscope Nomarski et à l'AFM, la concordance des résultats est remarquable. On peut séparer d'une part les mesures concernant la bille elle-même (absorption en photothermie et indice en Nomarski Interface) et d'autre part les mesures concernant la morphologie de la surface (mesures de réfraction, mesures Nomarski Surface et mesures AFM).

Nous avons vu que les mesures photothermiques montraient une décroissance puis disparition de l'absorption associées à l'étalement du défaut absorbant consti-

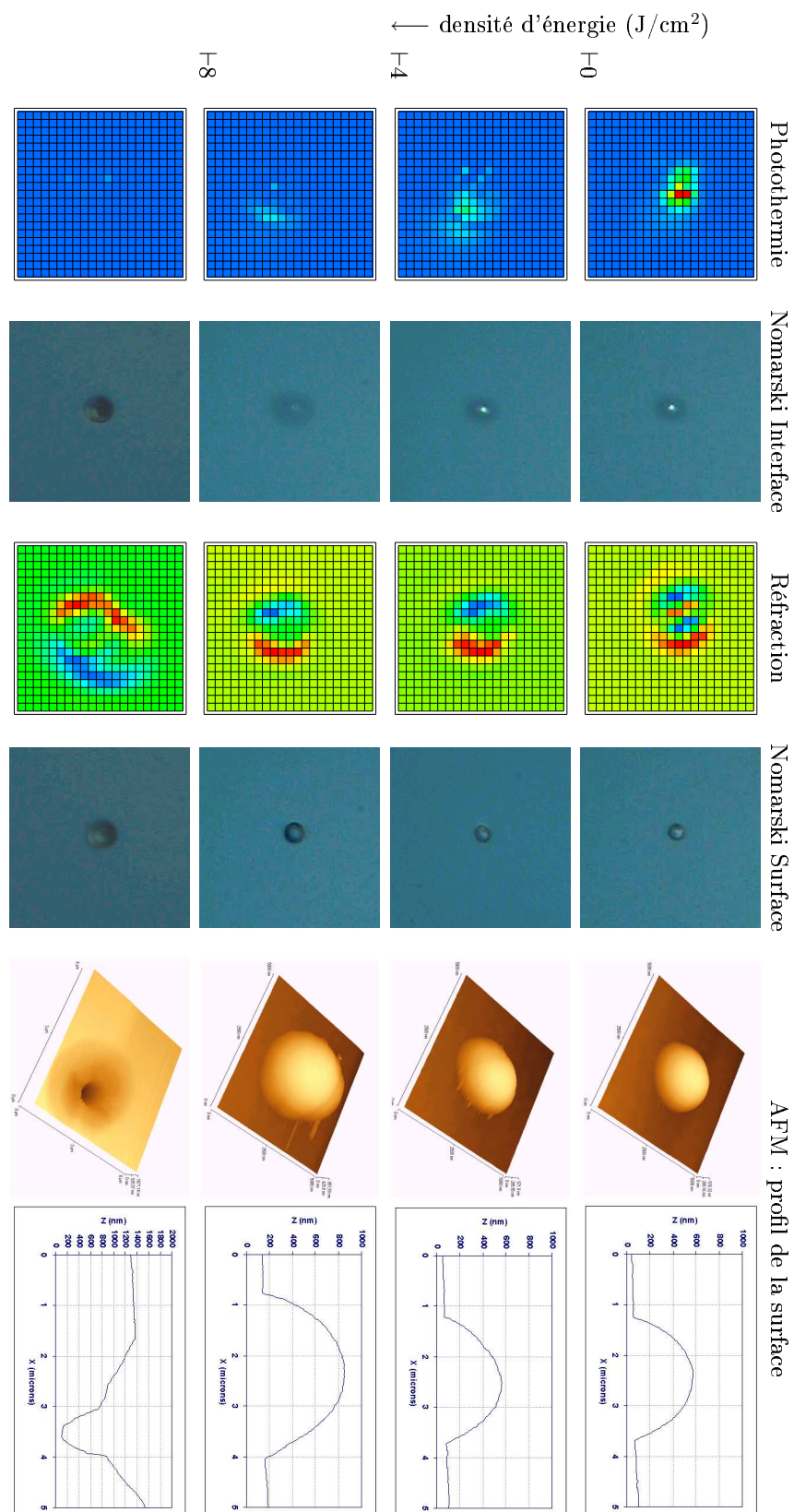


Fig. 4.16 – Résultats des mesures réalisées grâce à un microscope photothermique (photothermie et réfraction) et de l'étude morphologique réalisée grâce à un microscope Nomarski et à un AFM

#### 4.5. RÉSULTATS DES EXPÉRIENCES DE MICROSCOPIE PHOTOTHERMIQUE AVANT/APRÈS TIR

---

tué à l'origine de la bille d'or. Des modifications sont aussi observables au Nomarski lorsqu'on fait la mise au point dans le plan de la bille d'or. On observe que pour des densités d'énergie comprises entre  $4 \text{ J/cm}^2$  et  $8 \text{ J/cm}^2$  la tache lumineuse associée à la présence de la bille d'or sur les images Nomarski Interface disparaît, alors qu'aucune modification de la structure du dôme n'est détectée, aussi bien sur les images de réfraction, de Nomarski Surface et d'AFM. Si on augmente la densité d'énergie au delà de  $8 \text{ J/cm}^2$ , on observe sur les images de réfraction et de Nomarski Surface une modification de la surface à l'endroit où se situait le dôme. Un zoom de cette zone réalisé grâce à l'AFM confirme que le dôme a été remplacé par un cratère.

Des simulations du dépôt de l'énergie laser dans un défaut métallique sphérique et dans la silice environnante sont effectuées par le CEA. Elles montrent d'une part que la forme du cratère observée est caractéristique d'un endommagement initié par un défaut localisé de type bille d'or, d'autre part que la température de fusion de l'or est atteinte pour les densités d'énergie pour lesquelles on observe expérimentalement une diminution et un étalement de l'absorption du défaut [127, 128].

Notons que sur la figure 4.16, aucune modification de la bille d'or n'est détectable entre l'image Nomarski Interface avant tir et après le premier tir. Ce phénomène n'a pas été mis en évidence de manière systématique. Il peut être lié à une erreur de positionnement. En effet, une étude statistique d'irradiation des nano-billes à 355 nm, réalisée par microscopie Nomarski a été menée. Cette étude a mis en évidence des modifications des billes d'or détectables sur les images Nomarski pour des densités d'énergie correspondantes. Parallèlement à ces mesures par microscopie Nomarski, la microscopie photothermique permet de chiffrer en termes d'absorption les modifications observées.

Ces études de morphologie confirment donc bien les résultats obtenus par microscopie photothermique : la diminution progressive de l'absorption de l'or suite à des tirs à basse fluence a lieu sans modification de la structure de la surface de la couche. Ces expériences mettent donc en évidence des phénomènes de "pré-endommagement". Pour comprendre leur origine, des modélisations permettant de déterminer la phase de l'or pour les densités d'énergie mises en jeu sont menées. Des mesures complémentaires doivent également permettre de déterminer s'il existe une densité d'énergie seuil en-deçà de laquelle aucune diminution de l'absorption n'est observée.

## 4.6 Conclusion

Nous avons tout d'abord caractérisé par microscopie optique, AFM et microscopie photothermique, les échantillons étudiés, constitués d'inclusions d'or de taille sub-micronique dans la silice. Nous avons également montré que le microscope photothermique permet de détecter de manière non destructive ces défauts absorbants.

L'intérêt du dispositif de microscopie photothermique couplé à un banc de test d'endommagement laser est de permettre l'analyse des phénomènes précurseurs de l'endommagement. Nous avons appliqué ce dispositif à l'étude in situ de l'évolution de l'absorption des inclusions d'or lors de l'irradiation. Cette étude a été associée à une étude morphologique réalisée en microscopie optique et AFM. Celle-ci permet de caractériser les endommagements ainsi que d'analyser la structure de la surface après tirs à basse fluence. L'ensemble de ces expériences a fait ressortir deux résultats. Tout d'abord, les défauts localisés constitués par les billes d'or sont bien des précurseurs de l'endommagement laser. Ensuite, l'absorption de l'or diminue progressivement suite à des tirs à basse fluence, sans modification détectable de la surface. Ce phénomène peut être considéré comme un processus de "pré-endommagement".

Ces premiers résultats, obtenus grâce au nouveau dispositif que nous avons mis en oeuvre, permettent d'en montrer un exemple d'application. Cette étude devra être poursuivie et les résultats devront être comparés à la modélisation.

On aura notamment intérêt à étudier des billes de diamètre plus petit, de quelques nanomètres à une centaine de nanomètres, pour comprendre l'influence de la taille des défauts dans les mécanismes d'endommagement. Pour cette étude, il sera intéressant de disposer d'échantillons présentant des inclusions de taille faible, plus proche de la taille réelle des défauts initiateurs de l'endommagement dans les verres.

# Conclusion

L'objectif de ce travail de thèse la réalisation d'un nouveau dispositif expérimental permettant l'étude non destructive des défauts locaux absorbants précurseurs de l'endommagement laser dans les composants optiques. Pour détecter ce type de défauts, nous avons fait appel à des techniques de caractérisation alliant haute détectivité et haute résolution spatiale. Les méthodes photothermiques constituent un moyen non destructif performant de détermination de l'absorption et des propriétés thermiques des composants optiques. Nous avons donc mis en oeuvre un dispositif de microscopie basé sur la déflexion photothermique couplé à un dispositif de test d'endommagement. Ce dispositif permet de détecter de manière non destructive des défauts absorbants de taille sub-micronique et des variations locales de propriétés thermiques ainsi que de contrôler in situ l'évolution de ces défauts avec l'irradiation laser.

La configuration expérimentale optimale réunissant toutes les conditions pour réaliser un dispositif de microscopie basé sur la déflexion photothermique a tout d'abord été déterminée grâce à une étude bibliographique suivie d'une étude de faisabilité ainsi que d'une étude comparative théorique. En particulier, le faisceau pompe doit être fortement focalisé (diamètre de l'ordre de  $1\text{ }\mu\text{m}$ ) pour rendre possible une résolution sub-micronique. Le faisceau sonde doit également être focalisé, de manière à conserver une haute sensibilité. Par ailleurs, le pas d'échantillonnage des cartographies doit également être très petit pour permettre d'améliorer encore la résolution spatiale latérale. Nous avons choisi des moteurs pas à pas de résolution  $0,1\text{ }\mu\text{m}$  pour notre dispositif expérimental.

Par ailleurs, pour mieux comprendre le rôle de la longueur d'onde du laser pompe sur l'absorption des défauts, une étude des propriétés spectrales des défauts absorbants et diffusants a été menée dans les gammes de l'Ultra-Violet, du visible et de l'Infra-Rouge. Elle a permis de mettre en évidence la forte dépendance de l'absorption des défauts avec la longueur d'onde et ainsi la nécessité de caractériser l'absorption des composants optiques à leur longueur d'onde d'utilisation. En particulier, les mesures d'absorption et les tests d'endommagements laser doivent être faits à la même longueur d'onde.



## CONCLUSION

---

Finalement, nous avons réalisé un microscope photothermique couplé à un dispositif de test d'endommagement laser à la même longueur d'onde.

Le microscope est basé sur la déflexion photothermique d'un faisceau sonde transmis. Le faisceau pompe continu, de longueur d'onde  $1,06\ \mu\text{m}$  et le faisceau sonde sont colinéaires et focalisés à travers le même objectif. Le diamètre du faisceau pompe sur la surface de l'échantillon peut atteindre  $1\ \mu\text{m}$ . Un soin particulier a été apporté à l'obtention d'une haute résolution spatiale latérale et à sa validation. Pour cela, des échantillons présentant des défauts non isolés de  $1\ \mu\text{m}$  de diamètre ont été spécialement fabriqués. Un exemple d'application à l'imagerie haute résolution a alors permis d'illustrer, autant en terme de résolution que de précision de positionnement les performances du microscope photothermique.

La procédure expérimentale de microscopie photothermique a été optimisée pour minimiser la durée des acquisitions. En particulier, le choix d'une fréquence de modulation élevée a été rendue possible du fait de la faible influence de la fréquence sur le signal photothermique en configuration microscopie.

Les tests d'endommagement laser sont réalisés grâce à un laser pulsé de longueur d'onde  $1,06\ \mu\text{m}$  et de durée d'impulsion  $7\ \text{ns}$ , et le positionnement du faisceau est contrôlé par une camera CCD.

Ce nouveau dispositif a été appliqué à l'étude non destructive de nano-défauts absorbants, dans le but de comprendre leur rôle dans l'endommagement laser. Afin de disposer d'un matériau expérimental parfaitement connu, des échantillons "modèles" ont été spécialement fabriqués : ils sont constitués d'inclusions d'or de taille sub-micronique calibrées et enrobées de silice.

Des mesures de microscopie photothermique ont été effectuées sur ces échantillons, avant et après tir à des densités d'énergie inférieures ou égales au seuil d'endommagement. Ces mesures sont associées à une étude morphologique réalisée en microscopie optique et en microscopie à force atomique. Celle-ci permet de caractériser les endommagements ainsi que d'analyser la structure de la surface non endommagée après tirs à basse fluence.

L'ensemble de ces expériences a permis de mettre en évidence d'une part que les défauts localisés constitués par les billes d'or sont bien des précurseurs de l'endommagement laser, d'autre part que l'absorption de l'or diminue progressivement suite à des tirs à basse fluence, sans modification de la surface. Ce phénomène peut être considéré comme un processus de "pré-endommagement".

Finalement, un outil de caractérisation, nouveau au laboratoire, a été modélisé, réalisé expérimentalement et caractérisé. Ses performances, en terme de résolution notamment, ont été validées. Ce dispositif a permis de mettre en évidence l'existence de phénomènes jusque là indétectés. Il s'agit de modifications de l'absorption et des propriétés thermiques de la matière, se produisant lors de

l'irradiation, bien avant l'apparition d'endommagement. Pour poursuivre cette étude, plusieurs voies sont ouvertes. Tout d'abord des études théoriques sont en cours au CEA pour déterminer la phase de la matière pour les densités d'énergies d'irradiations mises en jeu. Ensuite, les études expérimentales doivent être poursuivies de manière systématique pour explorer le champ des divers paramètres entrant en jeu dans ces phénomènes : nature des échantillons, taille et densité des défauts, densités d'énergies d'irradiations, longueur d'onde d'irradiation, etc. Enfin, il paraît envisageable d'optimiser le microscope photothermique de manière à obtenir des informations à l'échelle micronique sur les inhomogénéités des propriétés thermiques. La connaissance des valeurs de ces paramètres est également très importante pour la modélisation et la compréhension des mécanismes fondamentaux de l'endommagement laser.

## *CONCLUSION*

---

# Bibliographie

- [1] N. Bloembergen. Roles of cracks, pores, and absorbing inclusions on laser induced damage threshold at surfaces of transparent dielectrics. *Appl. Opt.*, 12 :661–664, 1973.
- [2] T. W. Walker, A. H. Guenther, and P. Nielsen. Pulsed laser-induced damage to thin-film optical coatings. II theory. *J. Quantum Electron.*, 17 :2053–65, 1981.
- [3] W. Becker, J.K. McIver, and A.H. Guenther. Initiation of laser-induced damage by small metallic particles. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, D. Milam, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Damage in laser materials : 1987*, volume 756 of *NIST (US) Spec. Publ.*, pages 603–610, 1988.
- [4] M.R. Kozlowski and R. Chow. The role of defects in laser damage of multilayer coatings. In H.E. Bennett, L. Chase, A.H. Guenther, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 1993*, volume 2114 of *proceedings of SPIE*, pages 640–649, 1994.
- [5] J. Dijon, T. Poiroux, and C. Desrumaux. Nano absorbing centers : A key point in laser damage of thin films. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 1996*, volume 2966 of *proceedings of SPIE*, pages 315–325, 1997.
- [6] M.F. Koldunov, A.A. Manenkov, and I.L. Pokotilo. Thermoelastic and ablation mechanisms of laser damage to the surface of transparent solids. *Quantum Electronics*, 28 :269–73, 1998.
- [7] F.Y. Genin, A. Salleo, T.V. Pistor, and L.L. Chase. Role of light intensification by cracks in optical breakdown on surfaces. *JOSA A*, 18 :2607–2616, 2001.
- [8] J.Y. Natoli, L. Gallais, H. Akhouayri, and C. Amra. Laser induced damage of materials in bulk, thin films and liquid forms. *Appl. Opt.*, 41 :3156–3166, 2002.
- [9] A.C. Boccara, D. Fournier, W. Jackson, and N.M. Amer. Sensitive photothermal deflection technique for measuring absorption in optically thin media. *Optics Letters*, 5 :377–379, 1980.

- [10] W. Jackson, N.M. Amer, A.C. Boccara, and D. Fournier. Photothermal deflection spectroscopy and detection. *Appl. Opt.*, 20 :1333–1344, 1981.
- [11] J.C. Murphy and L.C. Aamodt. Photothermal spectroscopy using optical beam probing : mirage effect. *J. Appl. Phys.*, 51 :4580–4588, 1980.
- [12] N.M. Amer. New approaches to photothermal spectroscopy. *J. Phys.*, 44 :C6 :185–190, 1983.
- [13] M.A. Olmstead and N.M. Amer. A new probe of the optical properties of surfaces. *J. Vac. Sci. Technol. B*, 1 :751–755, 1983.
- [14] M.A. Olmstead, N.M. Amer, S.Kohn, D. Fournier, and A.C. Boccara. Photothermal displacement spectroscopy : an optical probe for solid and surfaces. *Appl. Phys. A*, 32 :141–154, 1983.
- [15] N.M. Amer. Characterization of the optical and thermal properties of matter by photothermal techniques. *Ingegneria nucleare*, 3 :35–40, 1985.
- [16] E. Welsch and D. Ristau. Photothermal measurements on optical thin films. *Appl. Opt.*, 34 :7239–7253, 1995.
- [17] E. Welsch. *Handbook of Optical Properties*, volume I :Thin films for optical coatings, chapter Absorption measurements, pages 243–271. CRC Press, Boca Raton, 1995.
- [18] P. Zimmermann and E. Welsh. Modeling of signal detection by using the photothermal probe beam deflection technique. *Rev. Sci. Instrum.*, 65 :97–101, 1994.
- [19] M. Commandré and E. Pelletier. Measurements of absorption losses in  $\text{TiO}_2$  films by a collinear photothermal deflection technique. *Appl. Opt.*, 29 :4276–4283, 1990.
- [20] M. Commandré, P. Roche, J.P. Borgogno, and G. Albrand. Absorption mapping for characterization of glass surfaces. *Appl. Opt.*, 34 :2372–2379, 1995.
- [21] M. Commandré and P. Roche. *Characterization of absorption by Photothermal Deflection*, chapter Thin Films for Optical Systems. Marcel Dekker Inc., 1995.
- [22] M. Commandré and P. Roche. Characterization of optical coatings by photothermal deflection. *Appl. Opt.*, 35 :5021–5034, 1996.
- [23] A. Gatto and M. Commandré. Multiscale mapping technique for the simultaneous estimation of absorption and partial scattering in optical coatings. *Appl. Opt.*, 41 :225–234, 2002.
- [24] W.C. Mundy, R.S. Hugues, and C.K. Carniliga. Photothermal deflection microscopy of thin optical coatings. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, D. Milam, and B.E. Newnam, editors, *Damage in laser materials : 1982*, volume 669 of *Nat. Bur. Stand. (U.S.) Spec. Publ.*, pages 349–354, 1984.

- [25] J.A. Abate, A.W. Schmid, M.J. Guardalben, D.J. Smith, and S.D. Jacobs. Characterization of micron-sized, optical coating defects by photothermal deflection microscopy. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, D. Milam, and B.E. Newnam, editors, *Damage in laser materials : 1983*, volume 688 of *Nat. Bur. Stand. (U.S.) Spec. Publ.*, pages 385–392, 1985.
- [26] W.C. Mundy, J.E.L. Ermshar, P.D. Hanson, and R.S. Hugues. Photothermal deflection microscopy of HR and AR coatings. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, D. Milam, and B.E. Newnam, editors, *Damage in laser materials : 1983*, volume 688 of *Nat. Bur. Stand. (U.S.) Spec. Publ.*, pages 360–371, 1985.
- [27] K. Friedrich and H.G. Walther. Some remarks on the resolution power of microscopic photothermal measurements. *J. of Mod. Opt.*, 38 :89–96, 1991.
- [28] E. Welsch and M. Reichling. Micrometer resolved photothermal displacement inspection of optical coatings. *J. Mod. Opt.*, 40 :1455–1475, 1993.
- [29] A. Bodemann, N. Kaiser, M. Reichling, and E. Welsch. Micrometer resolved inspection of defects and laser damage sites in UV high-reflecting coatings by photothermal displacement microscopy. *J. Phys.*, 44 :C7 :611–614, 1994.
- [30] M. Reichling, E. Welsch, A. Duparré, and E. Matthias. Photothermal absorption microscopy of defects in  $\text{ZrO}_2$  and  $\text{MgF}_2$  single layer films. *Opt. Eng.*, 33 :1334–1342, 1994.
- [31] A. Gatto. Défauts locaux absorbants et diffusants; rôle et évolution dans l’irradiation; corrélation; étude multi-échelles. Thèse de doctorat en Sciences, Université d’Aix-Marseille III, 1999.
- [32] R.J. Tench, R. Chow, and M.R. Kozlowski. Characterization of defect geometries in multilayer optical coatings. *J. Vac. Sci. Technol. A*, 12 :2808–2813, 1994.
- [33] S. Papernov, A.W. Schmid, J. Anzelotti, D. Smith, and Z.R. Chrzan. AFM-mapped, nanoscale, absorber-driven laser damage in UV high-reflector multilayers. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 1995*, volume 2714 of *proceedings of SPIE*, pages 384–394, 1996.
- [34] P.A. Temple. Examination of laser damage sites of transparent surfaces and films using internal reflection microscopy. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, D. Milam, and B.E. Newnam, editors, *Damage in laser materials : 1979*, volume 568 of *Nat. Bur. Stand. (U.S.) Spec. Publ.*, pages 333–341, 1979.
- [35] P.A. Temple. Total internal reflection microscopy : a surface inspection technique. *Appl. Opt.*, 20 :2656–2664, 1981.
- [36] L.M. Sheehan, M.R. Kozlowski, and D.W. Camp. Application of total internal reflection microscopy for laser damage studies on fused silica. In G.J.

- Exarhos, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, and M.J. Soileau, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 1997*, volume 3244 of *proceedings of SPIE*, pages 282–295, 1998.
- [37] L.M. Sheehan and Z.L. Wu. Defect characterization on super-polished fused silica surfaces polished for high power laser applications at 355 nm. In G. J. Exarhos, A. H. Guenther, M.R. Kozlowski, K. L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 1998*, volume 3578 of *proceedings of SPIE*, page 694, 1999.
  - [38] C. Amra. Light scattering from multilayer optics. part a : Tools of investigation. *J. Opt. Soc. Am.*, 11 :197–210, 1994.
  - [39] C. Amra. Light scattering from multilayer optics. part b : Application to experiment. *J. Opt. Soc. Am.*, 11 :211–226, 1994.
  - [40] S. Kassam, A. Duparré, K. Hehl, P. Bussemer, and J. Neubert. Light scattering from the volume of optical thin films : theory and experiment. *Appl. Opt.*, 31 :1304–1313, 1992.
  - [41] M. Poulingue, J. Dijon, P. Garrec, and P. Lyan. 1.06  $\mu\text{m}$  laser irradiation on high reflection coatings inside a scanning electron microscope. In G. J. Exarhos, A. H. Guenther, M.R. Kozlowski, K. L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 1998*, volume 3578 of *proceedings of SPIE*, pages 188–197, 1999.
  - [42] J. Dijon, G. Ravel, and B. Andre. Thermomechanical model of mirror laser damage at 1.06  $\mu\text{m}$ . Part II : Flat bottom pits formation. In G. J. Exarhos, A. H. Guenther, M.R. Kozlowski, K. L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 1998*, volume 3578 of *proceedings of SPIE*, pages 398–407, 1999.
  - [43] M.A. Paesler and P.J. Moyer. *Near-field optics*. Marcel Dekker Inc., N.Y., 1996.
  - [44] V.E. Gruzdev, M.N. Libenson, G.A. Martsinovski, M.A. Paesler, M.J. Soileau, and B.I. Yakobson. Near-field optical microscopy : application to investigation of surface laser-induced damage of transparent optical materials. In G.J. Exarhos, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, and M.J. Soileau, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 1997*, volume 3244 of *proceedings of SPIE*, pages 668–677, 1998.
  - [45] M. Yan, S. Oberhelman, W. Siekhaus, Z.L. Wu, L. Sheehan, and M. Kozlowski. Characterization of surface and sub-surface defects in optical materials using near field evanescent wave. In G. J. Exarhos, A. H. Guenther, M.R. Kozlowski, K. L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 1998*, volume 3578 of *proceedings of SPIE*, pages 718–720, 1999.

- [46] V. Lorient, J.P. Roger, A.C. Boccara, P. Gleyzes, and J.M. Mackowski. Probing of low loss materials at  $1.064\ \mu\text{m}$  for interferometric gravitational wave detection. *J. Phys.*, 44 :C7 :631–634, 1994.
- [47] J. Stone and L.W. Stulz. Reflectance, transmittance and loss spectra of multilayers Si/SiO<sub>2</sub> thin film mirrors and anti-reflection coatings for  $1.5\ \mu\text{m}$ . *Appl. Opt.*, 29 :583–588, 1990.
- [48] M.C. Dorf and J. Leckner. Reflection and transmission ellipsometry of a uniform layer. *J. Opt. Soc. Am. A*, 4 :2096–2100, 1987.
- [49] Y. Leprince-Wang, D. Souche, K. Yu-Zhang, S. Fisson, G. Vuye, and J. Rivory. Relations between the optical properties and the microstructure of TiO<sub>2</sub> thin films prepared by ion-assisted deposition. *Thin Solid Films*, 359 :171–176, 2000.
- [50] A.V. Tikhonravov, M.K. Trubetskov, A.V. Krasilnikova, E. Masetti, A. Duparré, E. Quesnel, and D. Ristau. Investigation of the surface micro-roughness of fluoride films by spectroscopic ellipsometry. *Thin Solid Films*, 397 :229–237, 2001.
- [51] R. Chow, J.R. Taylor, Z.L. Wu, C.A. Boccara, U. Broulik, Y. Chen, M. Commandré, J. Dijon, C. Fleig, A. Giesen, Z.X. Fan, P.K. Kuo, R. Lalezari, K. Moncur, H.J. O Abramski, C. Pellé, D. Reicher, D. Ristau, P. Roche, B. Steiger, M. Thomsen, M. Von Gunten, and Q. Zhao. Absorbance measurement of optical coatings - a round robin. In G. J. Exarhos, A. H. Guenther, M.R. Kozlowski, K. L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 2000*, volume 4347 of *proceedings of SPIE*, pages 62–73, 2001.
- [52] Z.L. Wu, M. Thomsen, P.K. Kuo, Y. Lu, C. Solz, and M. Kozlowski. Photothermal characterization of optical thin film coatings. *Opt. Eng.*, 36 :251–262, 1997.
- [53] B. Li and E. Welsch. Configuration optimization and sensitivity comparison among thermal lens, photothermal deflection, and interference detection techniques. In G.J. Exarhos, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, K. L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 1998*, volume 3578 of *proceedings of SPIE*, pages 594–603, 1999.
- [54] A. Ocariz, A. Sanchez-Lavega, A. Salazar, D. Fournier, and A.C. Boccara. Photothermal characterization of vertical and slanted thermal barriers : a quantitative comparizon of mirage, thermorefectance and infrared radiometry. *J. Appl. Phys.*, 80 :2968–2982, 1996.
- [55] D.A. Pinnow and T.C. Rich. Development of a calorimetric method for making precision optical absorption measurements. *Appl. Opt.*, 12 :984–988, 1973.
- [56] Test method for absorptance of optical laser components. Norme ISO 11551, 1997.



- [57] P.A. Temple. Experimental and theoretical considerations in thin film laser calorimetry. In R. I. Seddon, editor, *Optical Thin Films Proceedings*, volume 325 of *Proceedings of SPIE*, pages 156–162, 1984.
- [58] R. Atkinson. Development of a wavelength scanning laser calorimeter. *Appl. Opt.*, 24 :464–471, 1985.
- [59] D. Ristau and J. Ebert. Development of a thermographic laser calorimeter. *Appl. Opt.*, 25 :4571–4578, 1986.
- [60] N.K. Sahoo and K.Y.S.R. Apparao. Laser calorimeter for UV absorption measurements of dielectric thin films. *Appl. Opt.*, 31 :6111–6116, 1992.
- [61] A. Rosencwaig and A. Gersho. Theory of photoacoustic effects with solids. *J. Appl. Phys.*, 47 :64–69, 1976.
- [62] B.K. Bein and J. Pelzl. Theory of signal generation in a photoacoustic cell. *J. Phys.*, 44 :C6 :27–34, 1983.
- [63] H.G. Walther, E. Welsch, and J. Opfermann. Calculation and measurement of the absorption in multilayer films by means of photoacoustics. *Thin Solid Films*, 142 :27–35, 1986.
- [64] H.G. Walther and E. Welsch. Interpretation of photoacoustic thin film absorption measurements. *Sci. Instrum.*, 2 :73–85, 1987.
- [65] A.C. Tam. Applications of photoacoustic sensing techniques. *Rev. Mod. Phys.*, 58 :381–431, 1986.
- [66] P. Hess and J. Pelzl. *Photoacoustic and Photothermal Phenomena I*, volume 58, chapter Absorption measurements. Springer Ser. Opt. Sci., 1988.
- [67] A. Duparré, E. Welsch, H.G. Walther, H.J. Kuhn, and G. Schirmer. Optical losses of sputtered Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> films. *J. Phys.*, 48 :1155–1159, 1987.
- [68] A. Rosencwaig, J. Opsal, W.L. Smith, and D.L. Willenborg. Detection of thermal waves through optical reflectance. *Appl. Phys. Lett.*, 46 :1013–1015, 1985.
- [69] O. Gagliano. Etude multi-échelle des transferts de chaleur dans les revêtements métalliques réfractaires. Thèse de doctorat en Sciences, Université d’Aix-Marseille III, 2002.
- [70] E. Schaub. Optical absorption rate determination, on the front facet of high-power GaAs laser diodes, by means of thermorefectance technique. *Japanese Journal of Applied Physics*, 40 :2752–2756, 2001.
- [71] B. Li, L. Pottier, J.P. Roger, D. Fournier, and E. Welsch. Thermal characterization of film-on-substrate systems with modulated thermorefectance microscopy. *Rev. Sci. Instrum.*, 71 :2154–2160, 2000.
- [72] G. Langer, J. Hartmann, and M. Reichling. Thermal conductivity of thin metallic films measured by photothermal profile analysis. *Rev. Sci. Instrum.*, 68 :1510–1513, 1997.

- [73] J. Power. Pulsed mode thermal effect detection in the near field via thermally induced probe beam spatial phase modulation : a theory. *Appl. Opt.*, 29 :52–63, 1990.
- [74] Z.L. Wu, S.T. Gu, R. Krupka, P.K. Kuo, and Y.S. Lu. Non-destructive evaluation of thin film coatings using a laser-induced surface thermal lensing effect. *Thin Solid Films*, 290-291 :271–277, 1996.
- [75] B. Li, S. Martin, and E. Welsch. Pulsed top-hat beam thermal-lens measurement for ultraviolet dielectric coatings. *Optics Letters*, 24 :1398–1400, 1999.
- [76] B. Li, S. Martin, and E. Welsch. In situ measurement on ultraviolet dielectric components by a pulsed top-hat beam thermal lens. *Appl. Opt.*, 39 :4690–4697, 2000.
- [77] D. Fournier, B.C. Forget, C. Boué, and J.P. Roger. Micron scale photo-thermal imaging. *Int. J. Therm. Sci.*, 39 :514–518, 2000.
- [78] C.C. Williams and H.K. Wickramasinghe. Photothermal imaging with sub 100 nm spatial resolution. In P. Hess and J. Pelzl, editors, *Photoacoustic and Photothermal Phenomena I*, volume 58 of *Springer Ser. Opt. Sci.*, pages 364–369, 1984.
- [79] L. Gallais. Endommagement laser dans les composants optiques - métrologie, analyse statistique et photo-induite des sites initiateurs. Thèse de doctorat en Sciences, Université d’Aix-Marseille III, 2002.
- [80] G. Rousset, F. Charbonnier, and F. Lepoutre. *J. Appl. Phys.*, 56, 1984.
- [81] J.P. Roger. Contribution à l’étude des surfaces, interfaces et films minces par la méthode mirage. Thèse de doctorat d’état, Université Pierre et Marie Curie, 1988.
- [82] B.E. Newnam, D.H. Gill, and G. Faulkner. Influence of standing-wave fields on the laser damage resistance of dielectric films. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, D. Milam, and B.E. Newnam, editors, *Damage in laser materials : 1975*, volume 345 of *Nat. Bur. Stand. (U.S.) Spec. Publ.*, pages 254–271, 1975.
- [83] L.W. Casperson. Gaussian light beams in inhomogeneous media. *Appl. Opt.*, 12 :2434–2441, 1973.
- [84] *American Institute of Physics Handbook*. Mac Graw-Hill, 3<sup>ème</sup> édition, 1972.
- [85] M.R. Lange, J.K. Mac Iver, and A.H. Guenther. Laser damage threshold predictions based on the effect of thermal and optical properties employing a spherical model. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, D. Milam, and B.E. Newnam, editors, *Damage in laser materials : 1983*, volume 668 of *Nat. Bur. Stand. (U.S.) Spec. Publ.*, 1983.
- [86] P. Huguet Chantôme. Mesure de propriétés thermiques de matériaux diélectriques en couches minces par optique guidée. Thèse de doctorat en Sciences, Université d’Aix-Marseille III, 2001.

- [87] U. Willamowski, D. Ristau, and E. Welsch. Measuring the absolute absorptance of optical laser components. *Appl. Opt.*, 37 :8362–8370, 1998.
- [88] J.M. Bennett and L. Mattsson. *Introduction to surface roughness and scattering*. Optical Society of America, Washington D.C., ISBN 1-55752-609-5, 2<sup>nd</sup> edition, 1999.
- [89] A. During, C. Fossati, and M. Commandré. Multi-wavelengths imaging of defects in UV optical materials. *Appl. Opt.*, 41 :3118–3126, 2002.
- [90] M. Commandré. Caractérisation de l’absorption dans les composants optiques en couches minces par déflexion photothermique. Thèse de doctorat d’état, Université d’Aix-Marseille III, 1992.
- [91] L. Escoubas. Cartographies d’absorption et de diffusion de couches minces optiques; bilan des pertes interface/volume; corrélation défauts locaux/endommagement laser. Thèse de doctorat en sciences, Université d’Aix-Marseille III, 1997.
- [92] U. Willamowski, D. Ristau, T. Gross, P. Kadkhoda, H. Ehlers, and K. Starke. Untersuchungen zu iso standardmessverfahren zur charakterisierung optischer laserkomponenten. In *im Eureka- Verbundprojekt, EURO-LASER CHOCLAB (EU 1269), Instruments and Standard Test Procedures for Laser Beam and Optics Characterization*, Laser Zentrum Hannover e.V., 1998.
- [93] Iso/wd 13696 : Test method for radiation scattered by optical components. Working Draft of ISO TC 172/SC 9/WG 6, 1997.
- [94] P. Kadkhoda, A. Iler, D. Ristau, A. Duparre, S. Gliech, H. Lauth, U. Schuhmann, N. Reng, M. Tilsch, R. Schuhmann, C. Amra, C. Deumie, C. Jolie, H. Kessler, M. Tomas, C.G. Ribbing, and J.M. Bennett. International round-robin experiment to test the international organization for standardization total-scattering draft standard. *Appl. Opt.*, 39 :3321–3332., 2000.
- [95] P. Réfrégier. Corrélation optique et filtrage global. Cours de DEA Optique Image Signal, 1999.
- [96] L.A. Shepard R.M. Rose and J. Wulff. *The structure and properties of materials : electronic properties*. Marcel Dekker Inc., N.Y., 1966.
- [97] M. Poulingue, J. Dijon, M. Ignat, H. Leplan, and B. Pinot. New approach for the critical size of nodular defects : the mechanical connection. In G. J. Exarhos, A. H. Guenther, M.R. Kozlowski, K. L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 1998*, volume 3578 of *proceedings of SPIE*, pages 370–381, 1999.
- [98] A. During, C. Fossati, and M. Commandré. Development of a photothermal deflection microscope for multi-scale studies of defects. In G. J. Exarhos, A. H. Guenther, K. L. Lewis, M. J. Soileau, and C. J. Stolz, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 2001*, volume 4679 of *proceedings of SPIE*, pages 400–410, 2002.

- [99] A. Fournier, C. Cordillot, D. Bernardino, O. Lam, A. Roussel, C. Amra, L. Escoubas, G. Albrand, and M. Commandré. Characterization of optical coatings : damage threshold/local absorption correlation. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 1996*, volume 2966 of *proceedings of SPIE*, pages 292–305, 1997.
- [100] S.G. Demos, L. Sheehan, and M.R. Kozlowski. Spectroscopic investigation of SiO<sub>2</sub> surfaces of optical materials for high power lasers. In H. Helvajian, K. Sugioka, M. C. Gower, and J. J. Dubowski, editors, *Laser Applications in Microelectronic and Optoelectronic Manufacturing V*, volume 3933 of *proceedings of SPIE*, pages 316–320, 2000.
- [101] A.B. Papandrew, C.J. Stolz, Z.L. Wu, G.E. Loomis, and S. Falabella. Laser conditioning characterization and damage threshold prediction of hafnia/silica multilayer mirrors by photothermal microscopy. In G.J. Exarhos, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, K.L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 2000*, volume 4347 of *proceedings of SPIE*, pages 53–61, 2001.
- [102] M. Reichling, A. Bodemann, and N. Kaiser. Defect induced laser damage in oxide multilayer coatings for 248 nm. *Thin Solid Films*, 320 :264–279, 1998.
- [103] E. Welsch, H.G. Walther, D. Schafer, and R. Wolf. Measurement of optical losses and damage resistance of ZnS-Na<sub>3</sub>/AlF<sub>6</sub> and TiO<sub>2</sub> laser mirrors depending on coatings design. *Thin Solid Films*, 152 :433–442, 1988.
- [104] P.N. Favenne. *L’implantation ionique pour la microélectronique et l’optique*. 1993.
- [105] F. Bonneau, P. Combis, J. L. Rullier, J. Vierne, H. Ward, H. Bercegol, L. Lamaignère, M. Loiseau, M. Broyer, E. Cottancin, J. Tuillon, M. Pellarin, L. Gallais, J. Y. Natoli, M. Perra, M. Pellin, M. Savina, M. Fluss, and A. Hamza. Etude expérimentale et modélisation de l’initiation de l’endommagement de la silice sous irradiation laser impulsionnelle. Rapport de contrat CEA-DAM/Institut Fresnel, 2002.
- [106] F. Bonneau, P. Combis, J. L. Rullier, J. Vierne, H. Ward, M. Pellin, M. Savina, M. Broyer, E. Cottancin, J. Tuillon, M. Pellarin, L. Gallais, J. Y. Natoli, M. Perra, H. Bercegol, L. Lamaignère, M. Loiseau, and J. T. Donohue. Study of UV laser interaction with gold nanoparticles embedded in silica. *Applied Physic B*, à paraître.
- [107] S. Berthier. *Optique des milieux composites*. 1993.
- [108] E.D. Palik. *Handbook of Optical Constants of Solids*. Hardcover, 1997.
- [109] M. Commandré and A. During. Contamination et vieillissement de composants optiques, Partie A : Etude bidimensionnelle des pertes optiques

- et de la topographie de surface. Rapport de contrat CEA Valrho/Institut Fresnel, 2000.
- [110] *Topometrix user's manual*, chapter General information and Artifact in SPM. 1995.
  - [111] K.H. Guenther, T.W. Humphrerys, J. Balmer, J.R. Bettis, E. Casparis, J. Ebert, M. Eichner, A.H. Guenther, E. Kiessel, R. Kuehnel, D. Milam, W. Risek, S.C. Seitel, A.F. Stewart, H. Webbar, H.P. Webert, G.R. Wirtenson, and R.W. Wood. 1.06  $\mu\text{m}$  laser damage of thin film optical coatings : a round robin experiment involving various pulse lengths and beams diameters. *Appl. Opt.*, 23 :3743–3752, 1984.
  - [112] J.W. Arenberg, M.E. Frink, D.W. Mordaunt, G. Lee, S.C. Seitel, and A. Teppo. Correlating laser damage tests. *Appl. Opt.*, 28 :123–126, 1989.
  - [113] L.Gallais and JY.Natoli. Optimized metrology for laser measurement - Application to multiparameter study. *Appl. Opt.*, A paraître.
  - [114] Determination of laser-induced threshold of optical surfaces - Part 1 : 1-on-1. Norme ISO 11254, 2000.
  - [115] Determination of laser-induced threshold of optical surfaces - Part 2 : S-on-1. Norme ISO 11254, 2001.
  - [116] F. Bonneau, P. Combis, J. Vierne, and G. Daval. Simulation of laser damage of  $\text{SiO}_2$  induced by a spherical inclusion. In G.J. Exarhos, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, K.L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 2000*, volume 4347 of *proceedings of SPIE*, pages 308–315, 2001.
  - [117] M.D. Feit, J. Campbell, D. Faux, F.Y. Genin, M.R. Kozlowski, A.M. Rubenchik, R. Riddle, A. Salleo, and J. Yoshiyama. Modeling of laser-induced surface cracks in silica at 355 nm. In G.J. Exarhos, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, and M.J. Soileau, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 1997*, volume 3244 of *proceedings of SPIE*, pages 350–355, 1998.
  - [118] M.D. Feit, A.M. Rubenchik, D.R. Faux, R. Riddle, A. Shapiro, D.C. Eder, B.M. Penetrante, D. Milam, F.Y. Genin, and M.R. Kozlowski. Modeling of laser damage initiated by surface contamination. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 1996*, volume 2966 of *proceedings of SPIE*, pages 417–424, 1997.
  - [119] Synthetic fused silica, optical and technical grades. Schott lithotec, 2002.
  - [120] Quartz glass for optics, optical properties. Heraeus edition, 1994.
  - [121] Corning industrial grade fused silica. Corning, 2002.
  - [122] Fabrication of fused silica for research, science and industry. Technical glass products, 2002.

- [123] S. Papernov, A.W. Schmid, R. Krishnan, and L. Tsybeskov. Using colloidal gold nanoparticles for studies of laser interaction with defects in thin films. In G.J. Exarhos, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, K.L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 2000*, volume 4347 of *proceedings of SPIE*, pages 146–154, 2001.
- [124] A.V. Hamza, W.J. Siekhaus, A.M. Rubenchik, M.D. Feit, L.L. Chase, M. Savina, M.J. Pellin, I.D. Hutcheon, M.C. Nostrand, M. Runkel, B.W. Choi, M.C. Staggs, and M.J. Fluss. Engineered defects for investigation of laser-induced damage of fused silica at 355 nm. In G. J. Exarhos, A. H. Guenther, K. L. Lewis, M. J. Soileau, and C. J. Stolz, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 2001*, volume 4679 of *proceedings of SPIE*, pages 96–108, 2002.
- [125] J.Y. Natoli. Rapport final sur l'étude d'échantillons test par AFM et nomarski en vue d'appréhender l'initiation de l'endommagement de la silice sous irradiation laser impulsionnelle. Collaboration CEA-DAM Ile de France/Institut Fresnel, 2002.
- [126] H. Bercegol. Statistical distribution of laser damage and spatial scaling law for a model with multiple defect cooperation in damage. In G. J. Exarhos, A. H. Guenther, M.R. Kozlowski, K. L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-induced damage in optical materials : 1999*, volume 3902 of *proceedings of SPIE*, pages 339–346, 2000.
- [127] F. Bonneau, P. Combis, J. L. Rullier, J. Vierne, L. Gallais, J. Y. Natoli, L. Lamaignère H. Bercegol, and P. Bouchut. Comparison of numerical simulations with experiment on generation of craters in silica by a laser. In *Laser-induced damage in optical materials : 2002*.
- [128] J.Y. Natoli, L. Gallais, M. Perra, F. Bonneau, P. Combis, J. L. Rullier, P. Bouchut, and L. Lamaignère. Experimental results of laser interaction with included gold particles in silica at  $1\omega$  and  $3\omega$ . In *Laser-induced damage in optical materials : 2002*.



**Résumé :**

Afin d'étudier de manière non destructive les défauts locaux absorbants pré-curseurs de l'endommagement laser dans les composants optiques, nous réalisons un dispositif de microscopie haute détectivité et haute résolution, basé sur la déflexion photothermique et couplé à un dispositif d'endommagement laser.

La configuration optimale est tout d'abord déterminée par une étude bibliographique, une étude de faisabilité et une étude comparative théorique.

Par ailleurs, le rôle de la longueur d'onde est caractérisé par une étude des propriétés spectrales des défauts absorbants et diffusants dans l'UV, le visible et l'IR, pour des substrats et couches minces.

Nous présentons ensuite la réalisation expérimentale du dispositif. Une résolution sub-micronique est obtenue.

Enfin, nous l'appliquons à l'étude d'inclusions d'or de 600 nm dans la silice. Nous démontrons l'existence d'un phénomène de pré-endommagement : l'absorption de ces inclusions diminue après irradiation sans altération de la surface.

**Mots clés :**

déflexion photothermique - microscopie haute résolution - absorption - diffusion - couches minces optiques - endommagement laser - défauts précurseurs - seuil de tenue au flux - UV - IR.

**Abstract :**

To study in a non destructive way absorbing localized defects initiating laser damage in optical components, we implement a microscopy set-up with high spatial resolution and high detectivity, based on photothermal deflection method and combined with a laser damage test set-up.

First, optimal configuration is determined thanks to a bibliographical study, a feasibility study and a theoretical comparative study.

In other respects, the role of wavelength on absorption of defects is characterized thanks to a study of spectral properties of absorbing and scattering defects in the UV, visible and IR ranges, for substrates and thin films.

Then, we present the experimental realization of the new set-up. A sub-micronic spatial resolution is obtained.

Finally, this new set-up is applied to the study of gold inclusions of 600 nm embedded in silica. We demonstrate the existence of a "pre-damage" phenomenon : the absorption of inclusions decreases after laser irradiation without any surface alteration.

**Key words :**

photothermal deflection - high resolution microscopy - absorption - scattering - optical thin films - laser induced damage - precursor defects - laser damage threshold - UV - IR.